

油層常在微生物を利用した石油・天然ガスの 環境調和型資源開発技術の展望

Expectations for Environmental Friendly Techniques Involved in the Development of Resource Using Indigenous Microbes in Oil Reservoir

藤原 和弘^{1*}, 中村 孝道¹, 菅井 裕一², 岡津 弘明³
KAZUHIRO FUJIWARA, TAKAMICHI NAKAMURA, YUICHI SUGAI and KOMEI OKATSU

¹ 中外テクノス株式会社 つくばバイオフロンティアセンター 〒305-0047 茨城県つくば市千現 2-1-6

² 九州大学大学院工学研究院 〒819-0395 福岡市西区元岡 744

³ (独) 石油天然ガス・金属鉱物資源機構 〒261-0025 千葉県市美浜区浜田 1-2-2

* TEL: 029-858-6650 FAX: 029-858-6652

* E-mail: ka.fujiwara@chugai-tec.co.jp

¹ Chugai Technos Corp. Tsukuba Bio-Frontier Center, 2-1-6 Sengen Tsukuba-City, Ibaraki 305-0047, Japan

² Kyushu Univ. Laboratory of Resources Production and Safety Engineering,

744 Motoooka, Nishi-ku Fukuoka-City, 819-0395, Japan

³ Japan Oil, Gas and Metals Natl. Corp. Technical Research Center,

1-2-2 Hamada, Mihama-Ku, Chiba-City, 261-0025, Japan

キーワード: 枯渇油田, 油層常在微生物, 環境調和型資源開発技術, 微生物攻法 (MEOR), 微生物的天然ガス鉱床再生

Key words: Depleted oil fields, Indigenous microbes in oil reservoir, Environmental friendly techniques involved in the development of resource, Microbial enhanced oil recovery (MEOR), Microbial restoration of methane deposit (MRMD)

(原稿受付 2012年5月28日/原稿受理 2012年6月14日)

1. はじめに

主要エネルギー資源である石炭・石油・天然ガスおよび鉱物資源としてのリン・銅・レアアース等は、ものづくり立国を目指す我が国にとって戦略物資であり、これらの安定供給は産業活動の生命線となっている。しかし、我が国では、これらの資源をほとんど全て海外からの供給に依存しているのが実情であり、資源価格の高騰や地震、洪水等の天災等の影響を受け、昨今、我が国を取り巻くこれらの資源確保を巡る環境は悪化の一途をたどっている。一方、近年、各種の環境問題が地球規模で深刻化しており、経済・社会の発展を支える産業界の活動は、環境問題への配慮なしに成り立たない時代となっている。それ故、我が国においては、環境に配慮した技術を駆使することによってこれらの資源を開発し、中長期的な安定供給を果たすと共に、サステナブルな資源開発立国を目指すことが火急の課題となっている。対策技術の一つとして、有用な環境調和型資源開発技術の早期実用化が望まれており、微生物を利用した環境バイオテクノロジーも有用な環境調和型資源開発技術として貢献することが望まれる。

環境微生物の機能を駆使した資源開発技術としては、微生物を利用した石油増進回収技術 (微生物攻法)、微

生物による天然ガス生成技術、鉱物資源のバクテリアリーチング技術、廃水等からの有価金属資源回収技術等が挙げられる。また資源・エネルギー開発を側面から支援する技術として、地下微生物を指標とした各種評価技術 (核燃料廃棄物の地層処分における安全性評価技術や地熱利用プロセス [特に地下蓄熱] における環境影響評価技術等) が挙げられる。これらのうち、本報では、筆者らが最も深く携わってきた「環境微生物を利用した石油・天然ガス資源開発技術」について紹介する。

2. 油層常在微生物を利用した石油の 環境調和型資源開発技術

2.1. 微生物を利用した石油増進回収技術 (MEOR) の 世界的な開発動向

2.1.1. 微生物を利用した石油増進回収技術 (MEOR) の 概要と世界的な開発動向

枯渇油田とは、その時代に開発されている石油増進回収 (Enhanced Oil Recovery: EOR, 一次～三次回収) 技術を駆使しても採算性を確保した原油回収が不可能になった油田のことであり、一般に、油層内には埋蔵量の40～80%程度の原油が依然として取り残されているといわれている。しかし一方で、油田開発には一般に巨額の

資金投入が必要となり、また近年の油価急騰により、世界の石油鉱業界では、EOR 技術を駆使した原油回収に力を注いでいる。

一般に、石油回収の制限要因としては、

- ①油層圧力が経時的に衰退すること（排油力の減退）
- ②水-油間の界面張力が高いこと（低置換効率）
- ③水に比較して石油の粘度が高いこと（低置換効率と低掃攻効率）
- ④油層の構造が不均一であること（低掃攻効率）

等が挙げられ、EOR 技術ではこれらの制限要因の一部を克服することで回収率を向上させることを目的として

いる。

これまで EOR 技術としては、(1) 熱攻法、(2) ガスミシブル攻法、(3) ケミカル攻法、(4) 微生物攻法 (Microbial Enhanced Oil Recovery ; 以下 MEOR と称する)¹⁻³⁾ 等が考案されている (図 1)。

中でも MEOR は、目的微生物を直接地下の油層内に圧入して増殖させ、各種の生成物を代謝させることにより、原油増進回収率の向上を図る技術であり、石油の三次回収技術の中で、最も環境調和型であり、低コストな技術として注目されている。

MEOR は、1926 年に世界で最初に提案され⁴⁾、これまでに数々の室内実験や 100 例を超えるフィールドテスト (大規模現場実験) が世界中で行われている⁵⁾ (表 1, 2)。

これまでに実施されたフィールドテストでは、地上施設で大量培養した微生物と大量の栄養源を圧入井から油層内に圧入し、油層内で微生物を繁殖させ、これに伴って様々な代謝物を生産させて、石油の増産を期待する方式について検討が進められており、石油の増産に対して数々の有効な微生物代謝物やメカニズムが提唱されている (図 2)。具体的には、まず、微生物の増殖に伴って発生する CO₂ や炭化水素ガスにより油層内の圧力が上昇し、石油の排出エネルギーが高まることによって、石油の生産性が向上するというメカニズムや、増殖に伴って有機酸を生産する微生物を用いて、炭酸カルシウムから成る貯留岩 (炭酸塩岩) を溶かし、孔隙に閉じこめられている石油を回収し易くするというメカニズムが考えられている。また、界面活性物質を生産する微生物と栄養源を油層に圧入し、油層内で微生物によって界面活性物質を生産させて、粘性の高い石油を乳化 (エマルジョン化) させ、石油の粘度を下げ、最終的に石油を回収し易くするというメカニズムや、粘性物質 (水溶性ポリ

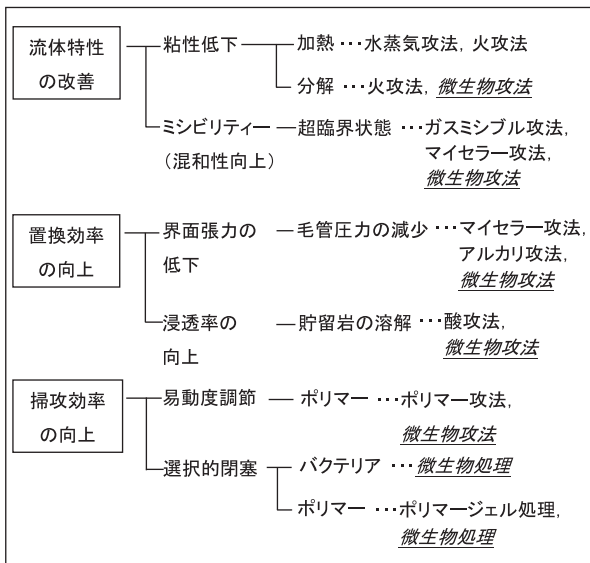


図 1. EOR (石油増進回収技術) の特徴。

表 1. 過去 50 年間の MEOR フィールドテスト (増油メカニズム別)⁵⁾

増油メカニズム		テスト数	成功	失敗	成功率
流体特性の改善	原油分解	34	29	5	85%
	CO ₂ ガス生成	10	9	1	90%
置換効率の向上	界面張力低下 (サーファクタント)	26	20	6	77%
	浸透率の向上 (酸)				
掃攻効率の向上	易動度調節 (ポリマー)	10	7	3	70%
	菌体による選択的閉塞 (MIOR)				
合計		80	65	15	81%

※対象油層の油飽和率：40-70% (初期は低飽和率であった)

表 2. 過去 50 年間の MEOR フィールドテスト (貯留岩の浸透率別)⁵⁾

貯留岩の浸透率 (md)	砂岩				炭酸塩岩				合計
	テスト数	成功	失敗	成功率	テスト数	成功	失敗	成功率	
1-10	0	0	0	0%	2	2	0	100%	2
10-75	7	6	1	85%	1	1	0	100%	8
75-1000	53	41	12	77%	1	1	0	100%	54
1000-10000	2	1	1	50%	0	0	0	0%	2
合計	62	48	14	77%	4	4	0	100%	66

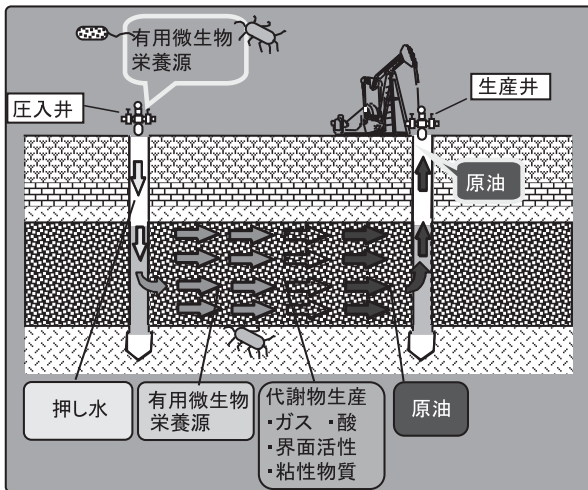


図2. 微生物攻法の概要。

マー)を生産する微生物と栄養源を油層に圧入し、微生物の増殖に伴って粘性物質を生産させて、油層内の水の粘度を向上させ、粘性の高い石油を押し出し易くするというメカニズムも考えられている。以上のように、微生物の様々な効果により、石油の回収率向上が期待されている。

2.1.2. 微生物を利用した石油増進回収技術 (MEOR) の課題

前節で述べたように、MEORに関して、これまでに数多くの室内実験やフィールドテストが世界中で行われてきたが、ほとんどの研究では、学術的に不十分な評価が行われていた。その主たる理由は、石油回収に対して効果的かつ成果が期待される方法を探している EOR 研究者・油生産者にとっては、巨額の資金を投入して、長期的にあらゆる科学データを収集しながら技術開発を進めるよりも、石油の増産効果や回収した石油の売買による収益確保等の目に見える効果が重要視されてきたことによる。

したがって下記のような状況にある MEOR は、着目に値する技術というより、むしろハイリスクプロセスの象徴と考えられているケースが多く、世界中で MEOR の技術開発が妨げられて来たというのが実情である。

- ① これまで、MEOR プロセスの有用性について、信頼できるデータが希薄であり、MEOR の有用性に関する認識が深まっていない。
- ② MEOR は最近まで水攻末期の油層など、油飽和率の低い油層に適用されているため、石油増進回収効果が得られたとしても、増油量が少なく、利益性が乏しいと考えられて来た。
- ③ ケミカル攻法に比べ、微生物が生産する代謝物の量が少なく、そのため、十分な効果が得られ難いというイメージがある。

以上より、MEOR 技術は、世界で最初に提案された後、90 年近く経った現在でも、技術開発が緒に就いたばかりと言っても過言ではなく、今後は、より科学技術に裏打ちされた技術開発を積極的に進め、普遍性のある知見を蓄積していくことが重要な課題となっている。

2.2. 日中国際共同研究の成果をふまえた将来展望

国内の主要な研究例としては、1996 年から 2002 年の 6 年間にかけて、中華人民共和国の東北地方にある吉林油田で実施された「微生物攻法フィールドテスト (現在の中国石油と独立行政法人石油天然ガス・金属鉱物資源機構との共同研究)」が挙げられ、科学技術に裏打ちされた研究を通じて普遍性のある知見を見出すことを目的とした研究が、世界に先駆けて行われた⁶⁻²⁹⁾。本国際共同研究の具体的な研究スコープは以下の通りである。

- ① 圧入水、栄養源、油層水、油層岩における常在微生物の調査
(PCR-T-RFLP 解析等のバイテクを利用)
- ② MEOR の実施によって引き起こされる油層内環境の変化に伴う油層内での多様な微生物の活性化状況の解明、およびそれらの微生物の MEOR 機能の有無の評価
(PCR-T-RFLP 解析等のバイテクを利用)
- ③ 生産水から圧入微生物を直接検出・定量化し得る手法の開発、およびこれに基づいた圧入微生物の油層内での増殖・代謝物生産等の動態の解明
(FISH 法等のバイテクを駆使)
- ④ 圧入微生物の動態と石油の増進回収効果との相関の解明

また、これらの検討を通じて、MEOR プロセスや MEOR のフィールドオペレーションに対して、以下に示すような数々の重要な知見が得られた。

- MEOR を適用する油層内にどの様な微生物が棲息しているのかを予め調査し、その上で石油の増産に効果が期待される微生物を選択することが重要。
- 現地の油層の環境に最も馴染みやすい性質を有する、現地の油層に棲息する微生物群の中から、MEOR に有効な機能を有する微生物をスクリーニングすることで、他の土着微生物との競合増殖の問題を回避することが有効。
- MEOR に有効な機能を有する微生物を油層内で優占化する技術 (MEOR に有効な機能を有する微生物の目的油層領域への移植技術、栄養源等の供給技術等) を考案することが重要。

さらにこの研究によって、過去何十年にもわたって石油生産量が低レベルで推移していた油田 (試験フィールド) において、少なくとも 1 年間以上にわたって石油が増産することが確認され、加えて微生物をモニタリングしながら圧入条件を最適化したことにより、微生物を圧入しなかった場合に比べて、石油の生産量が 1 年間で 3 倍以上に増加したことが示され、MEOR による石油の増産効果が科学的に証明された。ランニングコストに関しては、僅か 1.2 ドル (US\$) の追加費用を投じて 1 バレル (1 bbl = 約 3200 KL) の石油を増産できたという結果が得られており、MEOR の経済性も証明された²⁸⁻²⁹⁾。

上述のように、今日までに MEOR に関する科学的かつ実用的な知見が蓄積されつつあるが、今後も、より科学技術に裏打ちされた技術開発を積極的に進め、普遍性のある知見を蓄積していくことが重要と考えられる。具体的には、MEOR を実用技術とするため、今後、以下

の取組みを行うことにより、信頼できるデータを広く収集することが不可欠と考えられる。

- ① MEOR のみに着目するのではなく、油田開発の初期から終期までの間にどのような技術を適用し、開発を進めるのかという一連の開発戦略を煮詰めた上で、MEOR の最大の成果を狙うこと。
- ② MEOR を油飽和率の高い油層（50-70%）に適用し、石油増進回収効果が得られた場合に、高い石油生産量、収益性をもたらされるようにすること。
- ③ MEOR の開発研究の報告では、必ずコストや石油増進回収量をふまえた経済性評価を行うこと。
- ④ MEOR に適用する微生物は油層環境への適用性に富んだ油層常在微生物を利用すること。
- ⑤ ケミカル攻法に比べ、微生物が生産する代謝物量が少ないために、十分な効果を得られ難い点を克服するため、上記④については、遺伝子改変微生物（突然変異や遺伝子組換えによって MEOR 機能を高めた微生物）等の適用を検討すること。

3. 油層常在微生物を利用した天然ガスの環境調和型資源開発技術

3.1. 微生物を利用した地中メタン再生技術に関わる世界的な開発動向

3.1.1. CO₂-EOR 攻法と CCS-EOR

2010 年末に行われた「気候変動枠組条約第 16 回締約国会議（COP16：メキシコ）」において、CO₂ 地中貯留（Carbon Capture and Storage: CCS）が、条件付きながらも CDM 技術の対象として承認され、今後、地球温暖化対策技術の切り札として、CCS 技術の開発が加速されるものと考えられる。一方、今日まで、国内外で行われている代表的な CO₂ 地中貯留研究としては、CO₂-EOR 攻法（炭酸ガス攻法）が挙げられ、有力な EOR 技術の一つとして既に実用化されている。特に我が国は CO₂-EOR 攻法に関して世界の先端技術をリードしているといっても過言ではなく、CO₂ を地中に圧入する技術は我が国においても成熟している。したがって、今後は、CDM 技術の対象外となるが、発電所などから排出される CO₂ を利用した CO₂-EOR 攻法と CCS を組み合わせた CCS-EOR プロセスが、採算性を期待できる CCS 技術として、世界中で積極的に検討されるものと考えられる。現在までに、米国を中心に、世界中で 40 余りの CCS-EOR プロジェクトが計画または進行中であり³⁰⁾、有効な地球温暖化防止技術となることが期待されている。

ただし、CO₂-EOR 攻法は最小量の CO₂ を油層に圧入して最大量の増油を期待する技術であるのに対して、

CCS-EOR プロセスでは、最大量の CO₂ を圧入して最大量の増油を期待しつつ、CO₂ を可能な限り油層内に留めておくことが必要とされる技術であることから、油層工学に基づく石油の生産・制御技術の観点から見れば、CO₂-EOR 攻法と CCS-EOR プロセスは大きく異なるものであり、今後、CO₂-EOR 攻法をベースに、新たな CCS-EOR プロセスの技術開発が不可欠と考えられている。

3.1.2. 微生物を利用した地中メタン再生技術の概要と世界的動向

近年、CCS 技術として、枯渇油田に CO₂ を貯留しようとする試みが世界中でなされており、筆者らも枯渇油田への CO₂ 貯留に着目している。油田は岩石中の多孔質部に原油や天然ガスを数百万年もの長い期間にわたり貯蔵していたという実績があり、また不浸透性のキャップロックという地質構造を有しているため、CO₂ の貯留場所として適していると考えられている。さらに油田には、既存の生産・圧入施設が具備されているため、CO₂ の圧入に対してこれらを最大限に有効利用することで、イニシャルコストを最小限に留めることができる等のメリットもある。

そこで筆者らは、環境調和型資源開発技術の一つとして、化石燃料の燃焼によって排出される CO₂ を枯渇した油田の貯留層に圧入し、CO₂ を地中貯留すると同時に、貯留層を高圧反応器と見たてて、同層内で水素生成菌や CO₂ 還元メタン生成アーキア等を働かせ、CO₂ をメタンに変換した上で天然ガス鉱床の再生を図り（Microbial Restoration of Methane Deposit: MRMD 技術）、化石燃料として再び利用する持続的なカーボンリサイクルシステム¹³⁻³³⁾（図 3）の本格的な開発を 2003 年より進めている。本 MRMD 技術は、前節で述べた CCS-EOR プロセスの後段に位置づけられ（図 4）、CCS-EOR 技術

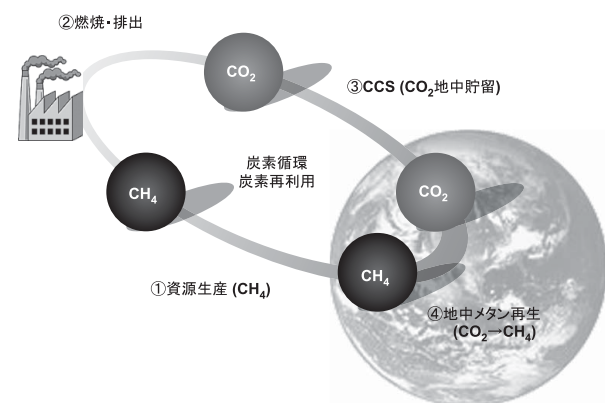


図 3. 環境微生物を利用した天然ガス資源開発技術（カーボンリサイクル）。

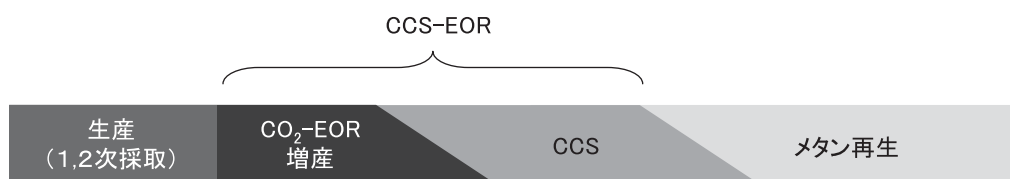


図 4. CCS-EOR における地中メタン再生技術の位置づけ。

にインセンティブを与え得る技術として有望であるばかりか、CCSの商業的な普及を目的としたCO₂回収・利用・貯留技術（Carbon Capture Utilization and Storage: CCUS）においても重要な技術と考えられる。

MRMD技術において想定しているフィールドオペレーション技術としては、水素生成の基質や活性化因子などを油層に圧入して、油層内に常在する土着の水素生成菌やCO₂還元メタン生成アーキアの働きを利用する方法、あるいは、能力の高い水素生成菌やCO₂還元メタン生成アーキアを、基質や活性化因子とともに油層内に圧入する方法等が挙げられる。ただし本MRMD技術では、水素生成菌とCO₂還元メタン生成アーキアのスムーズな種間水素伝達が重要となることから、複合微生物系かつ大深度地下油層環境下で、これらの微生物活動を人為的に制御し、効果を発揮させるフィールドオペレーション技術が不可欠と言える。

3.1.3. 微生物を利用した地中メタン再生技術の課題

筆者らはこれまでに、MRMD技術の技術的・経済的可能性について研究を進めており、まず、水素、メタン生成菌の棲息状況については、深度1,200~1,600 m、温度40~80°C程度の油層から汲み上げられる油層水や石油の調査結果から、油層内に関連微生物が多数棲息していることが明らかになっている¹³⁻³³。またこれらの微生物の油層環境下での水素・メタン生成能力については、経済的に十分とは言えないものの、促進条件を見つかることができれば、経済的なプロセスになり得ることが示唆されている³²。以上より、油層は地中バイオメタン再生の場として高いポテンシャルを有していることが示唆されている。

一方、MRMD技術の実現性を左右する主要課題としては、以下の点が挙げられる。

①油田常在微生物（水素生成菌）による原油からの水素生成の可能性

熱力学的な観点を考慮すると、油田常在微生物（水素生成菌）による原油からの水素生成は起こり難い反応と考えられる³⁴。しかし、高温高圧嫌気的条件下での原油分解については未解明な部分が多く、加えて油層環境条件（温度、圧力、原油、岩石、流れ、油層水pH、油層水成分等）の中には、原油からの水素生成を発エルゴン反応として誘導し得る因子が存在する可能性も否定できない。また筆者らのこれまでの検討結果から、高温高圧嫌気的条件下では、水素、CO₂生成に至る完全酸化およびCO₂還元反応によるメタン生成（ $4C_{16}H_{34} + 128H_2O \rightarrow 64CO_2 + 196H_2$, $196H_2 + 49CO_2 \rightarrow 49CH_4 + 98H_2O$ ）よりも、アルカン類の不完全酸化（酢酸、水素生成）反応および酢酸の酸化やCO₂還元によるメタン生成（ $4C_{16}H_{34} + 30H_2O + 34CO_2 \rightarrow 49CH_3COO^- + 49H^+$, $49CH_3COO^- + 49H^+ + 98H_2O \rightarrow 98CO_2 + 196H_2$, $196H_2 + 49CO_2 \rightarrow 49CH_4 + 98H_2O$ ）が主反応になると予測されている。したがって、これらをふまえると、高温高圧嫌気的条件下での原油分解反応を、単純な熱力学的な観点のみで解き明かすことは困難であり、反応場の詳細な理解が不可欠と考えられる。

②十分量かつ持続的な水素生成の可能性

高温高圧嫌気的条件下での原油分解反応による水素生成を、工学的アプローチによって持続的かつ十分量導く

ことが、システム上重要なブレイクスルーポイントとなる。そのため、反応場を考慮した数々の室内実験や、フィールドテストが不可欠である。

③油田常在微生物（メタン生成菌）による圧入CO₂の利用性

本MRMD技術では、油田常在微生物のうち、CO₂還元メタン生成アーキアがメタン生成過程でCO₂を利用することになるため、CCS-EORプロセスで圧入したCO₂のCO₂還元メタン生成アーキアによる利用性を把握し、メタン生成の反応場を理解することが不可欠である。すなわち、①で述べたように原油分解反応によって水素が生成すると、それに伴ってCO₂も生成するため、見かけ上、原油分解反応によって生成した水素およびCO₂を利用してCO₂還元メタン生成アーキアがメタンを生成するようにも解釈できるが、筆者らのこれまでの検討結果では、CO₂ガスを封入した実験系でのみメタン生成が確認されるケースが散見され、CO₂還元メタン生成アーキアによるメタン生成反応には、封入したCO₂が大きく関与することが示唆されている。そこで、油層工学的な観点をふまえて、CCS-EORプロセスで圧入したCO₂および原油分解反応によって生成したCO₂の油層内での拡散性、共存性、形態等を正しく理解することが不可欠であり、具体的には、これらに影響を及ぼす反応場（岩石、流れ、原油、温度、圧力、油層水pH、油層水成分等の数々の油層環境条件）の理解が極めて重要となる。またCCS-EORプロセスでCO₂を圧入する場合、CCS-EORプロセスを工夫することによって、CO₂の油層内での拡散性、局在性、形態等を制御可能であるため、MRMD技術では、油層内でのメタン生成を念頭においたCO₂の圧入条件を最適化することも必要となる。

3.2. 実用の可能性

前章で述べたように、油層内に残り残された粘度の高い液状の原油の回収率を飛躍的に向上させるのは容易ではない。これに対して、筆者らが研究を進めているMRMD技術では、油層内に残存する回収困難な原油を微生物で分解して水素に変換し、そこに地上からCO₂を圧入することによって、これらを微生物反応によりメタンに再変換するものであるため、いわば原油を加速的にメタンガスに変換（ガス化）して取り出すことになり（Enhanced Gas Recovery: EGR）、高い回収性が期待される。さらに近年、CO₂排出量の低減等を背景にエネルギー使用量に占める天然ガスの比率が、増加の一途をたどっており、世界規模での持続的な安定供給が望まれていることから、原油をメタンガスエネルギーに変換することのメリットは大きいと考えられる。

筆者らが研究を進めているMRMD技術は、最終的に、大規模な油田を対象としたフィールドオペレーション技術に移行することになり、特に、大深度地下油層環境下の複合微生物系で、水素生成菌とCO₂還元メタン生成アーキアの活動を人為的に制御し、メタン生成を加速させるオペレーション技術を確立することが不可欠と考えている。そこで、MRMD技術の根幹を成す油層内での微生物制御技術（フィールドオペレーション技術）の実用化に際しては、前章で述べた、既にフィールドレ

ベルの検討段階に入っている MEOR のノウハウを有効に活用することが望ましく、これにより実用化を加速的に進展させることが可能になると考えられる。

4. 結 び

昨今、我が国の資源・エネルギーのあり方が大きく問われていることから、各種の資源開発技術の現状と展望を見据えつつ、諸産業を支える資源・エネルギーの構造を抜本的に見直す時期が来ている。環境微生物の機能を駆使した環境調和型資源開発技術がそこに大きな可能性の扉を開くことを期待している。

文 献

- Brown, J.M., V. Moses, J.P. Robinson, and D.G. Springham. 1986. Microbial enhanced oil recovery: progress and prospects. *CRC Critical Reviews in Biotechnology* 3: 159-197.
- Bryant, R.S. 1987. Potential uses of microorganisms in petroleum recovery technology. *Proc. Okla. Acad. Sci.* 67: 97-104.
- Bryant, R.S. 1989. Laboratory and field studies on microbial enhanced oil recovery. *Society for Industrial Microbiology* 30: 255-267.
- Beckman, J.W. 1926. Action of bacteria on mineral oil. *Ind. Eng. Chem.* November 10: 3.
- Maudgalya, S., R.M. Knapp, and M.J. McInerney. 2007. Microbial Enhanced-Oil-Recovery Technologies: A Review of the Past, Present, and Future. *Society of Petroleum Engineers* 106978.
- Yonebayasi, H., H. Enomoto, T. Chida, and K. Fujiwara. 1996. Application of Microbial Enhanced Oil Recovery to Waterflooded Reservoir. *Proceeding of 17th Workshop of the International Energy Agency, Sydney Australia, September.*
- Yonebayasi, H., K. Ono, H. Enomoto, T. Chida, C-X. Hong, and K. Fujiwara. 1997. Microbial enhanced oil recovery field pilot in a waterflooded reservoir. *Society of Petroleum Engineers*, 38070.
- Yonebayasi, H., H. Enomoto, K. Fujiwara, T. Chida, and C-X. Hong. 1997. Laboratory R & D leads to MEOR Field Pilot in Fuyu-oilfield, China. *Proceeding of 9th European Symposium on Improved Oil Recovery.*
- Ono, K., S. Maezumi, H.K. Sarma, H. Enomoto, C-X. Hong, S-C. Zhou, and K. Fujiwara. 1999. Implementation and Performance of a Microbial Enhanced Oil Recovery Field Pilot in Fuyu Oilfield, China. *Society of Petroleum Engineers*, 54328.
- Maezumi, S., H.K. Sarma, N. Yazawa, S-C. Zhou, K. Fujiwara, H. Enomoto, and C-X. Hong. 1999. Performance of Microbial Huff-n-Puff Tests and Preparation for a Microbial Flood in Fuyu Oilfield, China. *Proceeding of 20th Workshop of the International Energy Agency.*
- Fujiwara, K., S. Tanaka, M. Ohtsuka, N. Ichimura, H. Yonebayashi, C-X. Hong, and H. Enomoto. 1999. Evaluation of the Use of Amplified 16S rRNA Gene-Restriction Fragment Length Polymorphism Analysis to Detect *Enterobacter cloacae* and *Bacillus licheniformis* for Microbial Enhanced Oil Recovery Field Pilot. *Sekiyu Gakkaishi* 42: 342-351.
- Fujiwara, K., S. Tanaka, M. Ohtsuka, H. Yonebayashi, and H. Enomoto. 2000. Identification of Bacteria Used for Microbial Enhanced Oil Recovery Process by Fluorescence *In Situ* Hybridization Technique. *Sekiyu Gakkaishi* 43: 43-51.
- 藤原和弘, 田中信治, 大塚牧子, 中谷一記, 前角繁之, 矢澤仁徳, 洪承燮, 千田 侖, 榎本兵治. 2000. 微生物攻法 (MEOR) のための油層内細菌活動に関する調査. *石油学会誌.* 43: 274-285.
- Fujiwara, K. 2000. Monitoring of microorganisms injected into oil reservoir on a Microbial Enhanced Oil Recovery Field Pilot. *Proceeding of International Symposium on Research and Education in the 21st Century, Sendai, Japan* pp. 31-37.
- 藤原和弘. 2001. 微生物石油増進回収技術の開発研究の現状とセルロース生産微生物の利用. *Cellulose Commun.* 8: 127-131.
- 藤原和弘. 2001. 技術予測レポート 第2巻「エネルギー・地球危機への対応技術編」第21節「微生物を利用した石油増進回収技術の研究開発とその将来展望」. pp. 224-232. 日本ビジネスレポート.
- Fujiwara, K. and H. Enomoto. 2003. Contribution of biotechnology toward advancing the practical use of MEOR—our experience—. *Proceeding of 2nd International Conference of Petroleum Biotechnology, Mexico City, Mexico.*
- 藤原和弘. 2003. 「セルロースの科学」第11章5節「油田で働くセルロース」. pp. 149-151. 朝倉書店.
- Fujiwara, K., Y. Sugai, N. Yazawa, K. Ohno, C.X. Hong, and H. Enomoto. 2004. Petroleum Biotechnology—Developments and perspectives—. Chapter 15 Biotechnological approach for development of microbial enhanced oil recovery technique. pp. 405-445. Elsevier Science B.V.
- Fujiwara, K. and K. Ohno. 2005. Microbial design aspects of MIOR/MEOR. *Proceeding of 4th International Conference Improved Oil Recovery, Teheran, Iran.*
- Fujiwara, K. and K. Ohno. 2005. Good design and operation of MIOR/MEOR field test based on the biotechnological approaches. *Proceeding of 13th International Oil, Gas and Petrochemicals Congress, Teheran, Iran.*
- 藤原和弘, 菅井裕一, 榎本兵治. 2008. 微生物攻法 (MEOR) 研究の現状と展望 —その概要と有用微生物について—. *石油技術協会誌.* 73: 244-253.
- 藤原和弘, 菅井裕一, 崔 吉, 榎本兵治. 2008. 微生物攻法 (MEOR) 研究の現状と展望 —実用技術化に向けての取り組み—. *石油技術協会誌.* 73: 296-306.
- 藤原和弘, 菅井裕一, 榎本兵治. 2008. 微生物攻法 (MEOR) 研究の現状と展望 —技術開発の将来展望と課題—. *石油技術協会誌.* 73: 531-540.
- Fujiwara, K., Y. Sugai, N. Yazawa, K. Ohno, C.X. Hong, and H. Enomoto. 2004. Petroleum Biotechnology—Developments and perspectives—. Chapter 15 Biotechnological approach for development of microbial enhanced oil recovery technique. pp. 405-445. Elsevier Science B.V.
- 大塚牧子, 藤原和弘, 菅井裕一, 木下 陸, 榎本兵治, 千田 侖, 矢澤仁徳, 永瀬圭司, 洪承燮, 崔 吉. 2004. Characterization of a Water-insoluble Polymer Producing Bacterium *Enterobacter* sp. CJF-002 for MEOR. *J. Jpn. Petro. Inst.* 47: 282-292.
- Nagase, K., S.T. Zhang, H. Asami, N. Yazawa, K. Fujiwara, H. Enomoto, C-X. Hong, and X. Liang. 2001. Improvement of Sweep Efficiency by Microbial EOR Process in Fuyu Oilfield, China. *Society of Petroleum Engineers* 68720.
- Nagase, K., S.T. Zhang, H. Asami, N. Yazawa, K. Fujiwara, H. Enomoto, C-X. Hong, and X. Liang. 2001. Introduction of Microbial EOR Process to Plug High-K Layer by Insoluble Polymer. *Proceeding of 22th Workshop of the International Energy Agency, Poland.*
- Nagase, K., S.T. Zhang, H. Asami, N. Yazawa, K. Fujiwara, H. Enomoto, C-X. Hong, and X. Liang. 2002. A Successful Field Test of Microbial EOR Process in Fuyu Oilfield China. *Society of Petroleum Engineer* 75238.
- 永瀬圭司, 張 淑涛, 浅海博基, 矢澤仁徳, 藤原和弘, 榎本兵治, 洪承燮. 2003. 中国扶余油田での微生物攻法フィールドテストの成功例. *石油技術協会誌.* 68: 271-281.
- Global CCS Institute: Large-scale Integrated Projects <http://www.globalccsinstitute.com/projects/browse>
- Fujiwara, K., T. Mukaidani, S. Kano, Y. Hattori, H. Maeda, Y. Miyagawa, K. Takabayashi, and K. Okatsu. 2006. Research Study for Microbial Restoration of Methane Deposit with Subsurface CO₂ Sequestration into Depleted Gas/Oil Fields.

- Proceeding of Society of Petroleum Engineers, Asia Pacific Oil and Gas Conference and Exhibition, Adelaide, Sep. 11–13, 101248.
- 32) 藤原和弘, 鹿野早苗, 服部嘉行, 向谷 司, 前田治男, 宮川善洋, 高林克百, 岡津弘明. 2008. 枯渇油田および油層常在微生物を利用した天然ガス鉱床の再生技術の開発. 環境バイオテクノロジー学会誌. 8: 17–28.
- 33) Kano, S., T. Mukaidani, Y. Hattori, K. Fujiwara, Y. Miyagawa, K. Takabayashi, and H. Maeda. 2009. Diversity of indigenous anaerobes and methane conversion system from reservoir oil indigenous anaerobes in depleted oil fields, J. Jpn. Petrol. Inst. 52: 297–306.
- 34) Jan Dolfing, Stephen R. Latter and Ian M. Head. 2008. Thermodynamic constraints on methanogenic crude oil biodegradation, The ISME Journal 2: 442–452.