論 文

非水溶性ポリマー生産微生物 CJF-002 による油層内流体の プロファイル・モディフィケーションに関する室内実験研究*

菅井 裕一**・木下 睦***・湯本 徹也****・榎本 兵治***
 洪 承燮*****・藤原 和弘*****・大野 健二*****

(Received February 28, 2005 ; accepted May 11, 2005)

Laboratory Investigation on Profile Modification of Oil Reservoir Fluids by Water-insoluble Polymer Producing Microorganism CJF-002

Yuichi Sugai, Atsushi Kishita, Tetsuya Yumoto, Heiji Enomoto,
 Chengxie Hong, Kazuhiro Fujiwara and Kenji Ono

Abstract : Microbial EOR (MEOR) field test^{1~4)} was carried out in Fuyu oilfield, China. In this field test, *Enterobacter* sp. CJF-002⁷⁾ which produced insoluble polymer was injected with nutrient, and oil production increased more than twice in volume because the high permeable zones were plugged with the polymer, and the water channeling was reduced^{8,9)}. Our research group carried out experimental studies to analyze the mechanisms of profile modification by the polymer produced by CJF-002.

Firstly, 10m one-dimensional reservoir model was used for analyzing the polymer production behavior of CJF-002. CJF-002 was injected with nutrient and incubated. After the incubation, water was injected to observe the pressure of every 1m-point. As a result, high differential pressure was observed at the section of 0-1m and 3-4m. That is, CJF-002 produced the polymer at these section more actively. Moreover, it was suggested that a mixture of culture solution and brine improved pH of culture solution, and this improvement reactivated the polymer production of CJF-002 at the middle section (3-4m) and lower section.

Secondly, network model was used for analyzing the effect of the polymer on profile modification. This model consisted of three 4m-low permeable sand-packs and one 4m-high permeable sand-pack. These sand-packs were reticulately jointed together at every 1m-point. CJF-002 was injected with nutrient from the central inlet and synthetic brine was injected from the other two inlets. Absolute permeability and flow rate of each section were calculated from the pressure observed at every jointing point. As a result, CJF-002 produced a significant amount of polymer in all the high permeable hose and the permeability of high permeable hoses decreased to approximately 1/2 of original permeability. Consequently, the flow rate of high permeable hoses decreased and that of low permeable hoses increased. It showed that the polymer produced by CJF-002 was effective on the profile modification.

Key words : MEOR, *Enterobacter*, CJF-002, polymer, profile modification, plug, network model, permeability

* 平成 14 年 5 月 29 日, 平成 14 年度石油技術協会春季講演会で一部発表 A part of this paper was presented at the 2002 Technical Meeting of the JAPT, May 29, 2002.

** 東北大学大学院工学研究科 Graduate School of Engineering, Tohoku University (現秋田大学ベンチャー・ビジネス・ラボラトリー)

*** 東北大学大学院環境科学研究所 Graduate School of Environmental Studies, Tohoku University

**** 東北大学大学院工学研究科学生 Graduate School of Engineering, Tohoku University (現同和鉱業株)

***** 中国石油 天然気股分有限公司吉林油田分公司 PetroChina Company Limited, Jilin Oilfield Company

***** 関西新技術研究所 Kansai Research Institute (現中外テクノス株)

***** 石油公団石油開発技術センター Japan National Oil Corporation, Technology Research Center (現石油天然ガス・金属鉱物資源機構 石油・天然ガス探鉱開発技術本部)

1. はじめに

MEOR (Microbial Enhanced Oil Recovery : 微生物 EOR) は、石油の増進回収に有用な機能を有する微生物を油層内で培養し、増殖する際の微生物反応を利用して石油の増進回収を図る方法である。一般には石油の増進回収に有用な物質 (ポリマー、サーファクタント、ガス、酸など) を代謝する微生物を栄養源とともに油層に圧入する方法をとっているため、油層の状況に応じて機能の異なる微生物を使い分けることによりさまざまな残存状態の石油の回収が可能である。そのため、MEOR の適用を検討する際には、対象油層の残油状況を把握し、その油層に最も効果的な微生物を選定して研究を進めることが重要となる。

筆者らの研究グループが参画した、石油公団 (現石油天然ガス・金属鉱物資源機構) と中国石油天然気股分有限公司吉林油田分公司との MEOR 国際共同研究^{1~4)} では、同分公司の扶余油田において MEOR フィールドテストが実施された。同油田ではフラクチャーが発達し、浸透率の異方性も大きいことから、油層内流体の流れのプロファイル・モディフィケーションが石油の増進回収に特に有効であると考えられている。そのため、ポリマーを生産する微生物を対象とした研究がさかんに進められた。この MEOR 国際共同研究では、いくつかの有用なポリマー生産微生物^{5,6)} が分離されたが、そのうちパイオフィルム (非水溶性ポリマー。以下、単にポリマーと称する) を生産する *Enterobacter* sp. CJF-002 (以下、CJF-002 と称する) が MEOR フィールドテストの供試微生物として選定された。CJF-002 の微生物学的特徴や CJF-002 が生産するポリマーの化学的特徴についてはすでに報告⁷⁾ されているので詳細な説明を省略するが、CJF-002 はモラセスを基質とした栄養源で培養するとセルロース誘導体のポリマーを迅速かつ多量に生産する。MEOR フィールドテストでは、CJF-002 の油層内培養により生産されたポリマーがフラクチャーを閉塞し、油層内流体の流れのプロファイル・モディフィケーションをもたらした結果、オイルカットが試験前に比べて 2 倍以上にまで回復するという極めて高い石油増進回収効果が得られている^{8,9)}。

筆者らの研究グループの他にもポリマーを生産する微生物を利用した MEOR に関するフィールド研究が数例報告されている。Jenneman ら^{10,11)} は油層内に土着しているポリマー生産微生物を活性化させて高浸透率層を閉塞するプロセスについて検討している。また、Lee ら¹²⁾ は *Bacillus licheniformis* を孢子の状態でお層内に圧入し、油層内で発芽、増殖ならびにポリマー代謝

を行わせて、油層内流体の流れのプロファイル・モディフィケーションを生じさせるプロセスについて検討している。いずれの研究においても高い石油増進回収効果が認められているが、ポリマーを生産する目的微生物の油層内挙動や、油層内で生産されたポリマーによる油層内流体のプロファイル・モディフィケーション効果の検証などが乏しい。そのため、研究対象フィールドでは効果が認められたものの、その他の油層に対する有効性に疑問が残っており、必ずしも汎用性が高いプロセスとはいえない。

これらの研究に対し、前述した筆者らの MEOR フィールドテストは、油層内における微生物、ポリマーならびに油層内流体の挙動を把握し、これらと石油増進回収との関連性を明らかにして、汎用性の高い MEOR プロセスを確立することに重点をおいた研究である。すなわち、油層内に土着している微生物相の調査^{13~15)}、当該フィールドへの適用を目的とした有用微生物の選択と土着微生物との競合に関する検討、CJF-002 の効果的な利用を目的とした圧入操作条件の検討、油層内における CJF-002 の増殖・代謝挙動の追跡、ならびにポリマーの生産に伴う油層内流体の流動挙動変化の解析などを行い、最終的に油層内における微生物の挙動と石油増進回収との関連性を明らかにすることを目的としたものである。

このうち本報では、油層内における CJF-002 のポリマー生産挙動の把握と、それに伴う油層内流体の流動挙動変化を実験的に解析することを目的として研究を行った結果を報告する。

MEOR の場合は、圧入された微生物や栄養源の状態 (例えば微生物濃度や栄養源 pH など) が、圧入井からの距離によって刻々と変化するため、油層内の極微小な一部分を模擬した実験装置では、全体的な挙動の把握が困難である。そのため本研究では、市販のホースに珪砂を充填して 5~10 m の模擬貯留層を作製し実験に用いることで、圧入井から離れた場所における圧入井近傍とは異なる培養条件 (栄養源の減少、培養液 pH の変化ならびに油層水との混合など) が、CJF-002 のポリマー生産に及ぼす影響についても把握可能とした。

まず、一次元の実験装置を用いて、圧入井からの距離に対する CJF-002 のポリマー生産挙動の変化について検討した。さらに、珪砂を充填したホースをネットワーク状に連結した擬平面状の実験装置を用いて、CJF-002 の圧入・培養による貯留層内流体の流れのプロファイル・モディフィケーション効果について検討した。

2. 実験装置ならびに実験方法

2.1 一次元模擬貯留層を用いた実験方法

(1) 実験装置

実験装置の概略図を Fig. 1 に示す。珪砂充填ホースは、市販の耐圧製ブレードホース（長さ 1,100 mm、内径 15 mm、肉厚 3 mm）の一端を閉じ、滅菌蒸留水を注いで、そこに 7 号珪砂（商品名日光珪砂 7 号、メディアン径 $120\ \mu\text{m}$ ）を充填して作製した。珪砂充填ホース内に気泡が残存しないように、随時ホースに振動を与えながら珪砂の充填を行った。珪砂充填ホースを実験に応じて複数本作製し、これらをポリプロピレン製の三方継手で連結して一次元模擬貯留層とした。三方継手内には 6 号珪砂（商品名東北珪砂 6 号、メディアン径 $200\ \mu\text{m}$ ）を充填し、三方継手の一方に圧力計を設置した。珪砂充填ホースからの珪砂の流出を防ぐために、7 号珪砂充填層と三方継手の接触面に 400 メッシュの金網を設置した。なお、実験に用いた各珪砂の粒度分布については別報⁶⁾を参照していただきたい。

珪砂充填ホースの連結と圧力計の設置完了後、合成油層水を定流量で圧入し、各ホース間の差圧を計測して絶対浸透率を求めた。この際、合成油層水を 2 PV 圧入して一次元模擬貯留層内の水を合成油層水に置換した。合成油層水とは前述した扶余油田の油層水中に含まれる主な成分を参考に調整したものであり、本研究ではこれをろ過滅菌したものを実験に用いた。その成分を Table 1 に示す。

なお、本実験で用いた珪砂充填ホースの孔隙率はおおむね 40 % であり、絶対浸透率はおおむね 5 darcy であった。

(2) 実験手順

作製した一次元模擬貯留層に CJF-002 ならびに栄養源を圧入して実験を行った。圧入する栄養源には合成油層水に、ビートを原料とする中国産モラセスを添加

Table 1 Components of the synthetic brine

	mg/L
NaCl	1,210
KCl	23
NaHCO ₃	2,820
CaCl ₂ · 2H ₂ O	140
MgCl ₂ · 6H ₂ O	114
FeCl ₃ · 6H ₂ O	3.4
KH ₂ PO ₄	10
NaHSO ₄ · H ₂ O	3.5

したものろ過滅菌して用いた。中国産モラセスの詳細な成分は別報⁵⁾に示したとおりである。本研究では、CJF-002 と栄養源とを別々に圧入する場合（回分圧入）と、CJF-002 と栄養源とを同時に圧入する場合（混合圧入）の 2 つのケースについて検討した。回分圧入の場合には、合成油層水に CJF-002 を懸濁させ、菌体濃度が $1.0 \times 10^6\ \text{cells/ml}$ となるように調整した CJF-002 懸濁液を一次元模擬貯留層内に 1.0 PV 圧入した後、栄養源を圧入する手順で実験を行った。混合圧入の場合は、栄養源に CJF-002 を $1.0 \times 10^6\ \text{cells/ml}$ となるように接種した CJF-002 と栄養源の混合溶液を圧入した。なお、混合圧入の場合には、圧入する CJF-002 と栄養源の混合溶液のボトルや一次元模擬貯留層までのラインを常時保冷剤で冷却し、一次元模擬貯留層に圧入される前に CJF-002 が増殖しポリマーを生産しないように留意した。また、CJF-002 を同栄養源で培養した際に見られる誘導期間に相当する約 6 時間おきに、新しく調整した CJF-002 と栄養源の混合溶液を交換して圧入を継続した。圧入終了後、一次元模擬貯留層の圧入口と流出口とを閉じ、2 日間 Shut-in することにより貯留層内培養を行った。Shut-in 終了後、合成油層水を 2 m/day の流速で圧入して、圧力計を設置した 1 m おきの各区間の差圧を測定した。

実験中は実験室内の温度を前述した扶余油田の油層温度と同じ 30 °C で一定に保持した。また、随時各三方継

Fig. 1 Schematic of experimental apparatus for one-dimensional flooding experiment.

手から一次元模擬貯留層内の流体を採取し、菌体濃度ならびに pH を測定した。総生菌数の測定にはルシフェリン、ルシフェラーゼによる生物化学発光法 (ATP 測定法) を用いた。なお、CJF-002 はポリマーのみならずガス (二酸化炭素が主成分) を増殖の定常期 (培養開始から約 16 時間以降) に生産する。本実験においても Shut-in 中に珪砂充填ホース内でガスの生産が認められた。このため、Shut-in 終了後の合成油層水の圧入初期において各三方継手を開放してガスを十分に排出させ、一次元模擬貯留層内流体を単一相としてから差圧の測定を実施した。

2.2 ネットワークモデルを用いた実験方法

(1) 実験装置

実験装置の概略図を Fig. 2 に示す。1 m 長ならびに 2 m 長の珪砂充填ホースを 4 m ずつ 4 列に並べ、それを網目状に連結し、4 本の珪砂充填ホースが交差する地点に圧力計を設置した。図中の H2, H6, H10 ならびに H14 には 6 号珪砂を充填した珪砂充填ホースを配し、絶対浸透率を他の珪砂充填ホースよりも 6~7 倍程度高くすることで、フラクチャーなどの局所的に油層内流体の流れが卓越した領域を模擬した。なお、6 号珪砂を充填したホースの孔隙率は約 38 % であった。

本実験では、CJF-002 の培養液と合成油層水との混合を促すために、図に示した P2 から CJF-002 と栄養源の混合圧入を行うとともに、P1 ならびに P3 から合成油層水を圧入した。また 3 つの流出口 (Out1, Out2 ならびに Out3) における流出水量をフラクションコレクターおよ

びメスシリンダーを用いて測定した。

(2) 実験手順

珪砂充填ホースを連結する前に、それぞれに合成油層水を圧入して絶対浸透率を測定し、珪砂充填ホース内の水を合成油層水に置換した。その後、各ホースを Fig. 2 に示したような配置で連結し、実験を開始した。

実験では、P2 から CJF-002 と前述した栄養源とを 4 m/day の流速で混合圧入し、P1 ならびに P3 から合成油層水を 2 m/day の流速で圧入した。それぞれ 3 日間圧入した後、3 日間 Shut-in してネットワークモデル内での培養を行った。培養期間終了後、Shut-in 前と同じ流量で、各地点の圧力が安定するまで P1, P2 ならびに P3 から合成油層水を圧入した。なお、本実験においても珪砂充填ホース内での CJF-002 によるガスの生産が確認されており、適時各継手部よりガスの排出作業を行った。

最後にネットワークモデルを分解し、各珪砂充填ホースの絶対浸透率を 1 本ずつ測定した。

(3) 圧入実験中の各珪砂充填ホースの絶対浸透率ならびに流量の算出方法

実験では各珪砂充填ホースの実験前後の絶対浸透率しか測定できないため、CJF-002 培養液や合成油層水圧入中の各珪砂充填ホースの絶対浸透率は計算により求めた。Fig. 3 に計算の流れを示す。各珪砂充填ホースについて、まず実測した初期絶対浸透率と実験開始直後の差圧から、ダルシーの式により実験開始直後の流量を求める。次のステップでは、前のステップで求めた各珪砂充填ホースの流量とそのステップにおける差圧から、絶対

Fig. 2 Schematic of experimental apparatus for network model flooding experiment.

Fig. 3 Flow chart of calculation.

浸透率を求める。さらに次のステップにおいては、前のステップで求めた絶対浸透率とそのステップにおける差圧から、流量を求める。この計算を繰り返すことにより、各珪砂充填ホースの絶対浸透率ならびに流量の時間変化を求めた。

3. 一次元模擬貯留層を用いた CJF-002 のポリマー生産挙動の検討

3.1 基本条件下における CJF-002 のポリマー生産挙動

本実験では、珪砂充填ホースを 10 本連結し、CJF-002 懸濁液を 10 m/day の流速で 1 日間 (1 PV) 圧入した後、栄養源を 2 m/day で 5 日間 (1 PV) 圧入した。なお、栄養源の中国産モラセス濃度は、前述した MEOR フィールドテストで用いられた濃度と同じ 10 % とした。

初期絶対浸透率の測定を 2 m/day の流速で行った場合の各珪砂充填ホースの差圧 (以降、初期差圧と略称) と、Shut-in 終了時の差圧 (以降、培養後差圧と略称) を Fig. 4 に示す。なお、CJF-002 懸濁液圧入中の各珪砂充填ホースの差圧は、初期差圧と同様であった。

まず、初期差圧と培養後差圧を比較すると、圧入口から 1 m までの区間において顕著な上昇が認められ、培養後差圧は初期差圧の約 9 倍であった。すなわち、

Fig. 4 Differential pressure of each section in one-dimensional flooding experiment.

□ : Before injection of culture medium,
■ : After shut-in

CJF-002 はこの区間において極めて活発にポリマーを生産したと推定される。以降、1 ~ 3 m の区間では、圧入口から離れるにしたがって培養後差圧が低下したが、3 ~ 4 m の区間で再び培養後差圧の顕著な上昇が認められた。この区間の培養後差圧は初期差圧の約 10 倍であり、0 ~ 1 m の区間と同様に、3 ~ 4 m の区間においても CJF-002 が活発にポリマーを生産したものと考えられる。また、4 m より下流の領域における培養後差圧も初期差圧の 2 ~ 4 倍に上昇しており、CJF-002 は圧入口から 10 m の範囲内であれば、一部の領域を除いてポリマーを生産することが分かった。

栄養源を 0.4 PV, 0.7 PV ならびに 1.0 PV 圧入した時点と Shut-in 終了時点の各地点の総生菌数ならびに pH をそれぞれ Fig. 5 と Fig. 6 に示す。一次元模擬貯留層内では一部の CJF-002 がポリマーや珪砂表面に付着しているため、流出する水中の菌体濃度は初期菌体濃度 (1.0×10^6 cells/ml) よりも低くなる場合がある。それでも、栄養源が十分に到達したと思われる地点で採取した流体中の菌体濃度は、初期菌体濃度の 5 ~ 9 倍であり、一次元模擬貯留層内で CJF-002 が増殖していることが示された。また、CJF-002 の増殖に伴って酸性代謝物が代謝され pH が低下するが、下流域ほど pH の低下が少ない傾向が認められた。これは、pH が低下した培養液が下流に流れながら合成油層水と混合されることで、再び pH が上昇するためと推定される。

以上の結果から、本実験における CJF-002 の一次元模擬貯留層内の挙動を考察すると次のようである。CJF-002 は、圧入口近傍 (0 ~ 2 m の区間) において極めて活発に増殖しポリマーを生産して、この区間にお

Fig. 5 Cell concentration observed at each point in one-dimensional flooding experiment.

- : After 0.4PV of culture medium injected
- : After 0.7PV of culture medium injected
- ▲ : After 1.0PV of culture medium injected
- × : After shut-in

Fig. 6 The pH observed at each point in one-dimensional flooding experiment.

- : After 0.4PV of culture medium injected
- : After 0.7PV of culture medium injected
- ▲ : After 1.0PV of culture medium injected
- × : After shut-in

る流動抵抗を元の10倍程度にまで増加させる。しかし、CJF-002の増殖に伴い、この区間では培養液のpHが著しく低下するため、それより下流の区間(2~3m)においてCJF-002のポリマー生産性が著しく低下する。栄養源を1.0PV圧入した時点で2~3m区間のpHは約6.7

~6.8であり、これはすでに報告されているCJF-002のポリマー生産性が低下し始めるpHに相当する7)。しかし、pHの低下した培養液がさらに下流に流れると、培養液と合成油層水とが混合してpHが上昇し、CJF-002によるポリマーの生産が再び活発になる。そのため本実験における3~4mの区間においても、流動抵抗が元の10倍程度にまで増加したものと考えられる。なお、4mより下流の区間においては、例えば、これらの区間に流れ込む培養液中の糖濃度が既に低くなっていると思われる、CJF-002によるポリマーの生産性が低下して、培養後差圧の上昇が小さかったものと考えられる。

3.2 油層水のpH調整効果に関する検討

前節の考察から、油層内におけるCJF-002のポリマーの生産にはpHが影響を及ぼしており、特に培養液と油層水との混合によるpHの変化が重要であることが示唆された。本節では合成油層水を用いて、油層水が培養液のpHに及ぼす影響と、CJF-002のポリマー生産に及ぼす影響を検討した。

(1) 合成油層水のpH調整効果

塩酸でpHを4.5~5.0に調整した栄養源50mlに合成油層水を滴下して栄養源pHの変化を測定した。実験では、中国産モラセスがpHの変化に及ぼす影響も考慮して、栄養源の中国産モラセス濃度を1%ならびに4%として実験を行った。

実験結果をFig. 7に示す。中国産モラセス濃度が低いほど合成油層水の滴下によるpHの上昇が顕著であった。栄養源pHをCJF-002のポリマー生産に好適な8.5にまで上昇させるのに要した合成油層水量は、中国産モラセス濃度が1%の場合に5ml(元の栄養源量の10%)であ

Fig. 7 The pH variation of culture medium by adding synthetic brine.

- : 1% Chinese molasses, ● : 4% Chinese molasses

り、4 % の場合に 10 ml (同 20 %) であった。このように、少量の合成油層水の滴下でも栄養源 pH は顕著に上昇することが示された。

扶余油田の油層水についても同様の pH 調整効果が報告⁵⁾されており、さらに油層内においては前述した一次元の実験の場合よりも油層水と培養液との混合がより顕著に生じると思われる。したがって、油層内では培養液が概ね CJF-002 にとって好適な pH に保たれることが予想され、前述した実験以上の活発なポリマー生産が期待できる。

(2) CJF-002 のポリマー再生産に及ぼす合成油層水の影響

中国産モラセス 4 % の栄養源に CJF-002 を 1.0×10^6 cells/ml の濃度となるように接種し、所定の時間経過後 (6 時間後、14 時間後、30 時間後ならびに 50 時間後) に培養液を 10 ml ずつ採取して、3 本のバイアル瓶に小分けした。なお、CJF-002 を栄養源に接種してから 6 時間後の培養液はポリマーができた状態であり、14 時間後の培養液はポリマーがほぼ生成しきった状態であり、30 時間以降の培養液はポリマーが完全に生成しきった状態である。小分けした 3 本の培養液をそれぞれ、そのまま培養 (Control と称する)、蒸留水を 2 ml 添加して培養 (D.W. 添加と称する)、ならびに合成油層水を 2 ml 添加して培養 (S.B. (Synthetic Brine) 添加と称する) に供した。培養温度は 30 °C で、2 日間培養を行い、ポリマーの生産状況を観察した。

実験結果を Fig. 8 に示す。また、小分けした時点における培養液の pH を同図中に括弧書きで示した。6 時間後に小分けした培養液に関しては、いずれの場合においても同程度のポリマーが生産された。14 時間後に小分けした培養液に関しては、いずれもポリマーが生産され、特に S.B. 添加で生産されたポリマーが Control ならびに D.W. 添加に比べて倍以上の大きさであった。30 時間後に小分けした培養液に関しては、S.B. 添加のみでわずかなものではあるもののポリマーの生産が確認された。54 時間後に小分けした培養液に関しては、いずれの場合においてもポリマーは生産されなかった。

以上の結果から、特に 14 時間後と 30 時間後に小分けした場合について、合成油層水の添加による効果が認められた。また、合成油層水を培養液に添加した場合は pH の上昇が他の場合に比して顕著であり、合成油層水との混合による pH の上昇が CJF-002 のポリマーの生産を再び生じさせる 1 つの理由であることが示された。

3.3 合成油層水との混合を促進した一次元模擬貯留層内での CJF-002 のポリマー生産挙動

実際の油層の場合は、前述した一次元模擬貯留層実験

Fig. 8 Production of water-insoluble polymer by CJF-002 in each culture medium.

- (a) Culture solution after 6 hours cultivation in original culture medium.
- (b) Culture solution after 14 hours cultivation in original culture medium.
- (c) Culture solution after 30 hours cultivation in original culture medium.
- (d) Culture solution after 54 hours cultivation in original culture medium.

の場合よりもさらに顕著な培養液と油層水との混合が生じるものと思われる。したがって、CJF-002 のポリマー生産挙動にも変化が生じるものと思われるため、本節では培養液と合成油層水との混合をさらに促進した場合の実験を行い、CJF-002 のポリマー生産挙動を検討した。

実験には珪砂充填ホースを 5 本連結した一次元模擬貯留層を用いた。CJF-002 と栄養源は混合圧入とし、下流域における糖濃度の低下を防ぐために、高い流速 (50 ml/day) で 1 PV 圧入した。これと同時に、圧入口から 1 m 地点より合成油層水を 10 ml/day の流速で圧入した。すなわち、圧入口から 1 m の地点で、培養液が合成油層水によって 1.2 倍に希釈されることになる。なお、本実験では、培養液と油層水との混合が顕著に生じると思われる圧入井から離れた領域の現象を再現するため、栄養源の中国産モラセス濃度を基本条件よりも低く (4 %) した。その他の実験条件は 2.1 で述べたとおりである。なお、比較として合成油層水を圧入しない場合についても実験を行った。

各実験における初期差圧と培養後差圧を Fig. 9 に示す。まず、合成油層水の圧入を行わない場合の培養後差圧は、圧入口から 2 m 地点までの間で上昇し、2 ~ 4 m の区間ではあまり上昇が見られなかったものの、4 ~ 5 m の区間で再び顕著な上昇を示した。これは前述した基本条件

Fig. 9 Differential pressure of each section in one-dimensional flooding experiment with injection of synthetic brine.

- : Before injection of culture medium (without injection of synthetic brine)
- ▨ : After shut-in (without injection of synthetic brine)
- ▤ : Before injection of culture medium (with injection of synthetic brine)
- : After shut-in (with injection of synthetic brine)

の場合と同様の傾向であった。これに対して、合成油層水を圧入した場合の培養後差圧は一次元模擬貯留層全域で高い傾向を示し、すべての範囲において、初期差圧の6～8倍にまで培養後差圧が増加した。

各実験における混合圧入終了時の各地点のpHをFig. 10に示す。合成油層水の圧入を行わなかった場合は、栄養源が十分に到達したと思われる領域においてすでにpHの低下が認められた。一方、合成油層水を圧入した場合には、一次元模擬貯留層の全域にわたって、初期栄養源pH8.0が保たれていた。

これらの結果から、合成油層水を圧入することにより、圧入終了後のpHが一次元模擬貯留層の全域にわたってほぼ一定に保たれたため、CJF-002が一次元模擬貯留層の全域にわたってポリマーを生産したものと考えられる。

前述したように、実際の油層内では、培養液と油層水との混合が本実験条件と同等以上に生じるものと考えられる。したがって、CJF-002のポリマーによる閉塞を生じさせたい領域にまでCJF-002と栄養源を圧入することができれば、フィールドにおいても期待どおりの閉塞を生じさせることが可能であることが示唆された。そのためには回分圧入が好ましく、CJF-002懸濁液圧入と後押し水圧入とを併用してCJF-002を確実に目的の領域に移植すること、ならびに圧入する栄養源中の糖濃度（モラセス濃度）とその圧入流量を高めに設定することで確実に目的の領域に糖分を供給することが重要である。

Fig. 10 The pH observed at each point in one-dimensional flooding experiment.

- : With injection of synthetic brine
- : Without injection of synthetic brine

4. ネットワークモデルを用いた CJF-002 による貯留層内流体流れの Profile modification に関する検討

- (1) 各珪砂充填ホースの絶対浸透率の変化と各流出口からの流出量の変化

各珪砂充填ホースの初期絶対浸透率と、実験終了後の絶対浸透率をFig. 11に示す。実験終了後、6号珪砂充填ホースであるH2, H6, H10ならびにH14の絶対浸透率が総じて初期絶対浸透率の半分程度にまで低下しており、これらの珪砂充填ホース内でCJF-002がポリマーを生産したことが示された。特にH6, H10ならびにH14においては、培養液と合成油層水との混合が生じていると考えられ、これにより6号珪砂充填ホース全域にわたって満遍なくポリマーが生産されたものと推察される。一方、7号珪砂充填ホースについては、H3とH5において顕著な絶対浸透率の低下が認められた。H3においては、H2の絶対浸透率の低下によりP2から圧入される培養液の一部がH3にも流入して、CJF-002によるポリマーの生産が行われたものと考えられる。また、H5においては、H6の絶対浸透率の低下に伴ってH2からの培養液がH5にも流入し、かつH1から合成油層水が流入して培養液と混合するため、CJF-002がポリマーを生産したものと考えられる。

このように、CJF-002の圧入により、局所的に流体の流れが卓越した部分の閉塞が可能であることが示された。

Fig. 11 Absolute permeability of each silica sand packed hose in network model experiment.

□ : Before injection of culture medium
 ■ : After shut-in

(2) 実験結果と計算結果との比較

ネットワークモデルを用いた実験の実測値と計算値とを比較して、前述した計算により各珪砂充填ホースの絶対浸透率ならびに流量の経時変化が検討可能か否かを評価した。

培養液圧入前ならびに Shut-in 終了後のネットワークモデルの P1, P2 ならびに P3 から、それぞれ 2 m/day, 4 m/day ならびに 2 m/day の流速で合成油層水を圧入し、各地点の差圧が安定した時点における各流出口からの流出量について、実測値と計算値とを比較した。

その結果を Fig. 12 に示す。実験では、培養液圧入前は Out2 からの流出量が他の 2.5 ～ 3.0 倍多かったが、Shut-in 終了後には、Out2 からの流出量が減少し、Out1 ならびに Out3 からの流出量が増加した。これは、ネットワークモデル内で貯留層内流体の流れに何らかの変化が生じたためと考えられる。

実測値と計算値とを比較すると、培養液圧入前に関しては良く一致していたが、Shut-in 終了後に関してはそれぞれ若干異なる値となった。前述したように、CJF-002 が生産するガスにより Shut-in 終了後にはネットワークモデル内に気泡が存在し、これにより実測値と計算値との間に差が生じたものと考えられる。しかし、Shut-in 終了後は培養液圧入前に比べて、Out2 からの流出量が減少し、Out1 ならびに Out3 の流出量が増加するという傾向は再現できているため、ネットワークモデル内の各挙動を定性的に評価することは十分可能であると考えられる。したがって、以降の検討では、この計算により栄養源圧入中における各珪砂充填ホースの絶対

Fig. 12 Comparisons of experimental and calculated flow out rate from each outlet.

□ : Experimental flow out rate before injection of culture medium.
 ■ : Calculated flow out rate before injection of culture medium.
 ⊞ : Experimental flow out rate after shut-in.
 ⊞ : Calculated flow out rate after shut-in.

浸透率変化ならびに流量変化を定性的に検討することとした。

(3) ネットワークモデル内流体の Profile modification に関する検討

実験で計測した各地点の圧力から、培養液ならびに合成油層水圧入中の各珪砂充填ホースの絶対浸透率ならびに流量を計算により求めた。

各珪砂充填ホースの絶対浸透率の経時変化を Fig. 13

Fig. 13 Absolute permeability of each silica sand packed hose in network model experiment.

● : H2, × : H3, □ : H5, ○ : H6, ▲ : H10, △ : H14

に示す。なお、絶対浸透率に顕著な変化が認められた H2, H3, H5, H6, H10 ならびに H14 のみを同図に示した。まず、6 号珪砂充填ホースについて考察する。圧入口に近い珪砂重点ホースから順次絶対浸透率が低下し始め、速やかに低下した後ほぼ一定の値になった。Shut-in 直前の時点では、圧入口近傍の絶対浸透率が最も低下し、以降下流であるほど絶対浸透率が低下するという傾向であった。これは前述した一次元模擬貯留層の場合と同様である。H6, H10 ならびに H14 の絶対浸透率は初期絶対浸透率に比して顕著に低下しており、CJF-002 がすべての 6 号珪砂充填ホース内で活発にポリマーを生産したものと考えられる。なお、これには P1 ならびに P3 から圧入した合成油層水が影響しているものと思われる。

一方、7 号珪砂充填ホースである H3 と H5 の絶対浸透率も初期絶対浸透率に比して顕著に低下した。これらは、いずれも上流側で 6 号珪砂充填ホース (H2 と H6) と隣接しており、H2 ならびに H6 の絶対浸透率が低下した後に、H3 ならびに H5 の絶対浸透率が低下するという傾向であった。すなわち、実験開始後間もなくは 6 号珪砂充填ホースに優先的に培養液が流れ込むが、6 号珪砂充填ホース内でポリマーが生産されて流動抵抗が増加すると、培養液が 7 号珪砂充填ホースへと流れ込むようになる。7 号珪砂充填ホース内でもポリマーが生産されるため、6 号珪砂充填ホースからやや遅れて絶対浸透率が低下するという現象が生じたものと推察される。さらに H5 の場合は、H1 から流れ込む合成油層水の影響もあって、CJF-002 によるポリマーの生産が活発に行われたも

のと思われる。

なお、H3 と H5 ほど顕著ではなかったものの、H7, H8, H9, H11, H12 ならびに H13 の絶対浸透率も初期絶対浸透率に比して低下しており、ネットワークモデル内において CJF-002 が広範囲にわたってポリマーを生産したことが示唆された。

H2, H3, H5, H6, H10, H11, H13 ならびに H14 における流量の時間変化を Fig. 14 に示す。図に示していない珪砂充填ホースも含めて、総じて各 6 号珪砂充填ホースの流量は減少する傾向であり、各 7 号珪砂充填ホースの流量は増加する傾向であった。特に圧入口から離れた H10, H11, H13 ならびに H14 において顕著な変化が認められた。一方、圧入口に近い H2, H3, H5 ならびに H6 の流量の変化は小さかった。

圧入口に近い場合は、6 号珪砂充填ホースに隣接する 7 号珪砂充填ホースにも糖濃度の高い培養液が流れ込み、両ホース内でポリマーが活発に生産され、ともに絶対浸透率が低下する。そのため、両ホースの絶対浸透率の比がほぼ一定で推移して、それぞれの流量の変化が小さい。しかし、圧入口から離れると、6 号珪砂充填ホース内ではポリマーが生産されるが、7 号珪砂充填ホース内において、糖濃度の低下などの理由によりポリマーの生産性が低下する。このため、6 号珪砂充填ホースの流量が減少し、7 号珪砂充填ホースの流量が増加する。

なお、6 号珪砂充填ホースにおいては総じて流量が一度低下した後に再び増加する傾向が認められた。これは、各 6 号珪砂充填ホースの絶対浸透率の低下により、隣接

Fig. 14 Flow rate in each silica sand packed hose in network model experiment.

● : H2, × : H3, □ : H5, ○ : H6, ▲ : H10, ◆ : H11, ◇ : H13, △ : H14

する7号珪砂充填ホースへと水の流れが変化し、そこでもポリマーが生産され絶対浸透率が低下するため、再び6号珪砂充填ホースへと水の流れが変化するという現象によるものである。7号珪砂充填ホース内におけるポリマーの生産が活発なほど、この傾向が顕著に認められた。

また、培養液圧入期間全体の流量変化挙動として、特に下流域については実験開始から16～20時間周期で流量の変化、安定、再変化ならびに再安定という現象が認められた。CJF-002を同栄養源に接種すると約16時間で増殖ならびにポリマー生産が飽和する⁷⁾ことを考慮すると、前述した各流量変化現象はそれぞれ、6号珪砂充填ホース内で生じた増殖誘導期、6号珪砂充填ホース内における対数増殖・ポリマー生産期、7号珪砂充填ホース内で生じた増殖誘導期ならびに7号珪砂充填ホース内における対数増殖・ポリマー生産期に相当するものと推察される。したがって、さらに継続して培養液の圧入を行った場合は、この周期で再び流量の変化が生じていき、さらなる貯留層内流体の流れのプロファイル・モディフィケーションが進行するものと思われる。このようなCJF-002に固有の16～20時間周期を考慮すると、例えば栄養源の圧入を16～20時間で集中して行い最も高浸透率の領域のみをCJF-002のポリマーで選択的に閉塞させることも可能であるなど、栄養源の利用という観点からより効率的なオペレーションの可能性が考えられる。

以上のようなネットワークモデルにおけるCJF-002のポリマー生産挙動から、実際の油層に適用した場合の油層内現象を考察すると以下のようなものである。

- 1) 圧入された培養液は、圧入の初期段階では油層内流体の流れが卓越した領域に優先的に流入する。
- 2) CJF-002は、培養液と合成油層水との混合の効果もあり、油層内流体の流れが卓越した領域全体でポリマーを生産する。
- 3) 油層内流体の流れが卓越した領域全体でポリマーが生産されると、油層内流体の流れに変化が生じて、浸透性の低い領域へも培養液が流入し、ポリマーが生産される。しかし、これは、圧入井から極めて近傍の培養液中の糖濃度が高いところに限られる。
- 4) 圧入井から極めて近傍の領域では浸透性の低い領域においてもポリマーが生産されるため、結果的に油層内流体の流動性に大きな変化は生じない。しかし、圧入井から少し離れた領域では、浸透性の低い領域におけるポリマーの生産が少ないため、油層内流体の流れが浸透性の低い領域へと改善される。

すなわち、CJF-002を油層内へ圧入した場合に、上記1)～4)のような油層内流体のProfile modificationが生じるものと期待でき、石油の増進回収効果が期待できる。

5. まとめ

本報では、MEORに有用なポリマー生産微生物であるCJF-002を油層内に圧入したときのポリマー生産挙動を明らかにすることを目的として実験的検討を行った。特に、一次元模擬貯留層を用いた実験によりCJF-002の

基本的なポリマー生産挙動を把握し、さらにネットワークモデルを用いた実験により、そのポリマーが油層内流体の流れの Profile modification に及ぼす影響を評価した。その結果をまとめると以下のようである。

- (1) CJF-002 は栄養源とともに貯留層内へ圧入されると、まず圧入口近傍約 2m の範囲で活発にポリマーを生産する。その下流ではポリマーの生産性が低下するが、さらに圧入口より 4m 程度下流域に達すると再び活発にポリマーを生産するという挙動が認められた。
- (2) CJF-002 によるポリマーの生産は培養液の pH に大きく影響を受ける。CJF-002 の酸性代謝物によって培養液の pH が低下しても、油層水と混合することで再び pH が上昇し、CJF-002 のポリマー生産が再び活発に行われる。
- (3) 培養液と油層水との混合をより促進した条件下で実験を行った結果、圧入口から 5m 地点までのすべてにおいて CJF-002 によるポリマーの生産が認められた。
- (4) 一次元模擬貯留層を用いた実験における CJF-002 のポリマー生産挙動を考慮すると、フィールドにおいては回分圧入が好ましく、CJF-002 懸濁液圧入と後押し水圧入とを併用して CJF-002 を確実に目的の領域に移植すること、ならびに圧入する栄養源中の糖濃度（モラセス濃度）とその圧入流量を高め設定することで確実に目的の領域に糖分を供給することが重要である。
- (5) ネットワークモデルにおいて CJF-002 は高浸透率領域のすべてにおいてポリマーを生産し、その絶対浸透率を半分以下にまで低下させた。
- (6) ネットワークモデル実験結果をもとにした数値計算により、CJF-002 が貯留層内の高浸透率領域でポリマーを生産することにより、特に圧入口から離れた領域において低浸透率領域へ流れ込む水量が増加するという、貯留層内流体流れの Profile modification を明らかにした。
- (7) 培養液圧入期間全体の流量変化挙動として 16 ～ 20 時間周期で流量の変化、安定、再変化ならびに再安定という現象が認められた。これは CJF-002 のポリマー生産挙動を反映したものであり、この周期を考慮して、例えば栄養源の圧入を 16 ～ 20 時間で集中して行い最も高浸透率の領域のみを選択的に閉塞させるなど、栄養源の利用という観点からより効率的なオペレーションの可能性が考えられる。

SI 単位換算係数

$$\text{Darcy} \times 9.86923 \text{ E} - 01 = \mu \text{ m}^2$$

引用文献

- 1) 米林英治・田口 充・藤原和弘・吉田信一郎・榎本兵治, 1996: 微生物攻法に関する研究の現状とフィールドテストへの展望, 石技誌, **61** (6), 485-493.
- 2) Yonebayashi, H., Ono, K., Enomoto, H., Chida, T., Hong, C. X. and Fujiwara, K., 1997: Microbial Enhanced Oil Recovery Field Pilot in a Waterflooded Reservoir, *Paper SPE 38070 presented at 1997 SPE Asia Pacific Oil and Gas Conference*, Kuala Lumpur, Apr.14-16.
- 3) Yonebayashi, H., Yoshida, S., Ono, K. and Enomoto, H., 2000: Screening of Microorganisms for Microbial Enhanced Oil Recovery Processes, *Sekiyu Gakkaishi (J. Jpn. Petrol. Inst.)*, **43** (1), 59-69.
- 4) Fujiwara, K., Sugai, Y., Yazawa, N., Ohno, K., Hong, C. X. and Enomoto, H., 2004: Biotechnological approach for development of microbial enhanced oil recovery technique, R. Vazquez-Duhalt and R. Quintero-Ramirez, ed.: *PETROLEUM BIOTECHNOLOGY*, 405 - 455, ELSEVIER.
- 5) 菅井裕一・洪 承燮・池田修一郎・千田 佑・榎本兵治・矢澤仁徳, 2002: MEOR を目的とした水溶性ポリマー生産微生物のスクリーニング, 石技誌, **67** (3), 277-286.
- 6) 菅井裕一・洪 承燮・千田 佑・榎本兵治・矢澤仁徳, 2002: 水溶性ポリマー生産微生物 TU-15A による石油の増進回収に関する室内実験研究, 石技誌, **67** (5), 491-500.
- 7) 大塚牧子・藤原和弘・菅井裕一・木下 睦・榎本兵治・千田 佑・矢澤仁徳・永瀬圭司・洪 承燮・崔吉, 2004: MEOR に有用な非水溶性ポリマー生産微生物 CJF-002 の特性, *J. Jpn. Petrol. Inst.*, **47** (4), 282-292.
- 8) Nagase, K., Zhang, S. T., Asami, H., Yazawa, N., Fujiwara, K., Enomoto, H., Hong, C. X. and Liang, C. X., 2002: A Successful Field Test of Microbial EOR Process in Fuyu Oilfield, China, *paper SPE 75238 presented at 2002 SPE/DOE Improved Oil Recovery Symposium*, Tulsa, Oklahoma, April.
- 9) 永瀬圭司・張 淑濤・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, 石技誌, **68** (4), 271-281.
- 10) Jenneman, G. E., Moffitt, P. D. and Young, G. R., 1996: Application of a Microbial Selective-Plugging Process at

- the North Burbank Unit: Prepilot Tests, *SPE Production & Facilities*, February, 11-17.
- 11) Jenneman, G. E., Lappan, R. E. and Webb, R. H., 2000 : Bacterial Profile Modification With Bulk Dextran Gels Produced by the In-Situ Growth and Metabolism of *Leuconostoc* Species, *paper SPE 59307 presented at 2000 SPE/DOE Improved Oil Recovery Symposium*, Tulsa, Oklahoma, April.
- 12) Lee, O. H., Bae, H. J. and Hejl, K., 1998 : Laboratory Design and Field Implementation of Microbial Profile Modification Process, *paper SPE 49074 presented at 1998 SPE Annual Technical Conference and Exhibition*, New Orleans, Louisiana, September.
- 13) Fujiwara, K., Tanaka, S., Ohtsuka, M., Ichimura, N., Yonebayashi, H., Hong, C. X. and Enomoto, H., 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 (J. Jpn. Petrol. Inst.)*, **42** (5), 342-351.
- 14) Fujiwara, K., Tanaka, S., Otsuka, M., Yonebayashi, H. and Enomoto, H., 2000: Identification of Bacteria Used for Microbial Enhanced Oil Recovery Process by Fluorescence *In Situ* Hybridization Technique, *Sekiyu Gakkaishi (J. Jpn. Petrol. Inst.)*, **43** (1), 43-51.
- 15) 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 俊・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, *Sekiyu Gakkaishi (J. Jpn. Petrol. Inst.)*, **43** (4) : 274-285.