講 演
 Lecture

微生物原油分解 EOR フィールドパイロットに向けて* ~ 微生物培養実験からパイロット計画策定まで ~

岩間 弘樹^{**†}・五十嵐 雅之^{**}・若山 樹^{**}・米林 英治^{**}・眞弓 大介^{***}・前田 治男^{***}
 須田 好^{***}・玉木 秀幸^{***}・坂田 将^{***}・鎌形 洋一^{***}

(Received July 6, 2018 ; accepted September 25, 2018)

Technical studies for preparing microbial EOR pilot in domestic oil field – From laboratory scale microbial cultivation to well scale pilot planning

Hiroki Iwama, Masayuki Ikarashi, Tatsuki Wakayama, Hideharu Yonebayashi, Daisuke Mayumi

Haruo Maeda, Konomi Suda, Hideyuki Tamaki, Susumu Sakata and Youichi Kamagata

Abstract : The joint research project was started in 2008 to study new microbial enhanced oil recovery (MEOR) method using microbes which convert oil into methane in reservoir. In advance of starting the project, petroleum geochemistry researches were conducted for INPEX domestic oil fields. Clear signs of bio-degradation caused by microbial reactions were observed in some fields while no signs in nearby other fields. Based on the geochemistry research results, we started the project to implement this method in the domestic depleted oil fields. It was intended to initiate the microbial reactions artificially in the reservoir, by injecting water containing microbes. In general, gas recovery factor is higher than that of oil because of the difference in fluid mobility. Therefore, this method can increase hydrocarbon recovery factor by converting immovable oil to movable methane.

In order to evaluate the potential of this method, microbial cultivation experiments have been conducted under the reservoir condition. The bio-augmentation processes were reproduced in the cultivation bottles by mixing oil and water containing the functional microbe communities. The experimental results showed that the oil conversion reactions can be promoted by optimizing cultivation conditions: porous media reproduced by packing sands, in particular. For detailed evaluation under more actual reservoir condition, further microbe cultivation experiment is ongoing in reservoir rock core. In parallel, a field pilot operation is being planned. For estimating the methane producing rate in a well scale, a simple tank model was constructed to evaluate oil conversion reaction near wellbore. Our results show a positive potential of the new MEOR method that converts residual oil into methane in the depleted oil fields.

Keywords : MEOR, oil conversion, depleted oil field, bacteria, archaea

1. はじめに

国内で産出される天然ガスのうち、比較的浅い深度に存在しメタンを主成分とするものの多くは、微生物由来のガ

* 平成 30 年 6 月 14 日、平成 30 年度石油技術協会春季講演会開発生産部門シンポジウム「貯留層の可能性を探る挑戦～更なる油ガスの回収を目指して」で講演 This paper was presented at the 2018 JAPT Development and Production Technology Symposium entitled “Challenges to the reservoir potential / Seeking more oil and gas” held in Niigata, Japan, June 14, 2018.

** 国際石油開発帝石株式会社 INPEX Corporation

*** (独)産業総合技術研究所 Advanced Industrial Science and Technology

† Corresponding author : E-Mail : hiroki.iwama@inpec.co.jp

図 1 これまでの研究成果・今後の検討課題

スであることが炭素同位体比などを用いた地化学的研究により明らかとなっている (Waseda ら, 2008)。微生物によるメタン生成反応では, 地下に常在する嫌気性微生物が有機物を分解する過程でメタンが生成される。国際石油開発帝石株式会社 (旧: 帝国石油株式会社) と産業技術総合研究所では, 2008 年より共同研究プロジェクトを立ち上げ, 地下常在微生物の原油分解メタン生成反応を利用する EOR に関する研究を行ってきた (図 1)。本稿では, 当該共同研究のこれまでの歩みと, その現状, ならびに今後の展開としてフィールドパイロット計画について概説する。

2. 背景

本研究が本格的に着手される以前, 予備調査として帝国石油株式会社が国内で操業する油田の産出原油の組成分析調査を行っている。その際, 特定油田の原油組成には, 生分解によるとみられる特徴的な傾向が観察されたのに対し, 国内の異なる油田においては, その傾向が確認されない事例が散見された。その後の詳細調査の結果, 原油組成の違いは, 特定油田固有の地下常在微生物が原油を分解していることにより引き起こされている可能性が高いことが示唆されたことから, 2008 年より, 微生物による原油分解メタン生成反応に着目した共同研究を開始することとなった。本研究では, 秋田県の八橋油田, 山形県の新堀油田を主要研究対象フィールドとし, さまざまな研究を実施している (図 2)。本研究の背景については, 前田ら (2010a, 2010b, 2011, 2017) にも詳しい。

3. 室内培養実験

本節では, 本研究のこれまでの成果のうち室内微生物培養実験に関する成果について紹介する。

本研究が対象とする微生物による原油分解反応経路は, 特定の微生物による単一の反応ではなく, さまざまな種を含む微生物コミュニティによる複合的な一連の反応を指す (図 3)。主な反応は, ①原油分解酢酸生成反応, ②酢

図 3 微生物による原油分解反応経路

酸分解反応, ③酢酸資化メタン生成反応および④水素資化メタン生成反応, の 4 つであり, 本研究ではこの中でも特に①, ③の反応に着目し微生物培養実験を実施してきた。

3.1 高温低圧培養実験

研究の端緒として, まず油層内に存在する微生物コミュニティのメタン生成能力を調査するため, 八橋油田から採取した油層水・原油を用いた高温低圧培養実験 (55℃, 0.15 MPaG) を実施した。本稿で紹介する培養実験は特記しない限り, 温度は微生物学的に高温環境領域, すなわち油層温度である 55℃で実施している。原油・油層水サンプリングに当たっては, 井戸元から導入管を用いて滅菌済サンプリング容器内にじかに生産溶液を採取し, 作業中は常にサンプル容器気相部を窒素パージするなど, 嫌気性保持に十分注意を払ったうえで作業を実施した (図 4)。生産井の生産性によっては, 井戸元とサンプリング容器の間に滅菌処理を施した小型タンクを用いて油水分離処理をある程度行うなどの工夫も施した。

高温低圧培養実験では, バイアル瓶に油層水と原油を入れた上で気相部を窒素で置換し, 同バイアル瓶を油層温度条件に設定した培養器に静置し培養を行った (図 5)。し

図 2 八橋・新堀油田

図 4 生産現場での油層水サンプリング

図5 高温低圧培養実験

かし、高温低圧条件では微生物反応によるメタン生成は確認されず、実験は地下油層を模擬した高温高压環境での微生物培養に移ることとなった。

3.2 高温高压培養実験

高温低圧培養実験で、微生物反応によるメタン生成が十分に確認されなかったことから、より油層条件に近い環境での実験を行うため、ステンレス製耐圧容器を用いた高温高压条件 (55°C, 5.0MPaG) での培養実験を開始した (図6)。

低圧実験と同様、八橋油田から採取した油層水および原油を用い、気相部を窒素で置換、油層を模擬した圧力・温度に設定した上で培養を行い、生成ガスの組成、油層水中の酢酸濃度や pH などの変化を観測した。その結果、培養実験開始後 25 日頃からメタン生成が実験系全てにおいて確認され、同時に油層水中の酢酸濃度の減少が認められた。その後の培養液の菌叢解析結果より、この反応は酢酸が酢酸酸化菌によって、水素と二酸化炭素に分解されたのち、水素資化メタン生成反応を経てメタンに変換されたもので

図6 高温高压培養実験

あることが判明し、メタン生成菌の培養に高压環境が重要であることが強く示唆される結果となった。

3.3 バイオオーグメンテーション

高温高压培養実験でのメタン生成の成功を受け、2011 年からは、新堀油田の油層水を八橋油田原油に添加することで、八橋油田原油の分解反応を促進するための培養実験を開始した。実験に先立ち、新堀油田の原油組成分析を実施したところ、芳香族原油成分およびアルカン原油成分の組成に、八橋油田では未確認の生分解によるとみられる特徴的な傾向が見られた。詳細調査のため、採取した油ガス試料を対象に地化学分析を実施したところ、上述の傾向が改めて確認され、新堀油田には原油を分解する微生物が存在する一方、八橋油田には存在しない可能性が示唆された。そこで、新堀油田に存在すると想定される原油分解微生物を、油層水の形で八橋油田原油に添加することで、当該油田での原油分解メタン生成反応を人為的に促進させ、enhanced oil recovery (EOR) として利用する「バイオオーグメンテーション (bio-augmentation)」について検討することとなった。バイオオーグメンテーションは、元来の環境には存在しない微生物を人為的に別の場所から移動させ、微生物反応を起こす手法である。

3.4 原油分解反応促進のための培養条件最適化

原油分解メタン生成反応は酢酸分解メタン生成反応に比べ、その反応速度が非常に遅いことが過去に実施した放射性炭素同位体トレーサーを用いた実験結果から予測されていた。そこで、原油分解反応を促進するため、培養条件をさまざまに変え反応条件の最適化を行った。2016 年には、「バイオスティミュレーション (bio-stimulation)」の手法も取り入れることで、本研究で最速のメタン生成速度を達成した (図7)。バイオスティミュレーションは、栄養塩の添加などで人為的に微生物の活動・増殖を刺激することで微生物反応を促進させる手法である。

反応前後の原油組成分析の変化より、最高速度を達成した実験系では原油中の芳香族成分のみならずアルカン成分も微生物により直接的に分解されたことが強く示唆され、

図7 本研究での最高メタン生成速度の推移

実験での累計メタン生成量も、組成分析結果から推定された理論メタン生成量とほぼ一致した。最適化の検討項目について以下に記す。

① 微生物栄養源の最適化

微生物の原油分解反応を促進するため、微生物の栄養源として酵母抽出物各種を添加、また各種無機成分の配合量を調整した培地を用いた培養実験を行った。その結果、特定の栄養源、成分の組み合わせで、メタン生成反応が著しく促進されることが確認された。

② 孔隙系での培養

実際の貯留層環境に、より近い条件での培養を再現するため、目開き寸法 0.3 ～ 0.5 mm の海砂を充填して擬似的な貯留層環境を高温ステンレス滅菌容器内に作成し、高温高压培養実験を実施した。その結果、海砂を充填した孔隙系が存在する条件で、メタン生成量が大きく促進されることが確認された。孔隙が存在することで微生物を含む油層水と原油との接触面積が増加し、原油分解反応が促進される(図 8)。本研究で対象としている微生物コミュニティは、基本的に水相中に存在するため、接触面の増加が直接的にメタン生成量の増加につながったものと推定される。

③ 植継による微生物コミュニティの優先化

原油分解微生物コミュニティを実験系内で優先化させ

図 8 孔隙系での原油分解反応概念図

図 9 植継によるメタン生成反応の促進

るため、メタン生成が確認された系に対し、「植継」と呼ばれる栄養源・原油・培養液の入れ替え作業を繰り返した。元来、油田から採取した油層水の中には原油分解に関与しない微生物も多く含まれている。また、実験系を閉鎖したままの状態を保つと、各種反応の副次的な生成物により、目的とする反応が阻害されることが懸念される。植継を繰り返すことで、海砂粒子表面に原油分解コミュニティを残したうえで培養環境を改善することが可能となり、結果的に原油分解メタン生成反応が促進されることとなった(図 9)。

3.5 室内微生物培養実験の今後の展望

これまでの実験結果より、バイオオーグメンテーションの国内油田での適用の可能性が大きく広がってきている。しかしながら、本手法を経済的な EOR として実際のフィールドに適用するためには、克服すべき課題は依然として多い。より早く・より効率的に原油分解するための培養条件の探索、気相部のガス組成の原油分解速度への影響評価、炭素同位体を用いた原油分解メカニズム解明などを軸に、今後も高温高压培養実験に引き続き取り組む予定である。

4. 岩石コアを用いた微生物培養実験

海砂を充填した高温高压孔隙環境下での微生物培養実験の成功を受け、現在、岩石コアを用いた微生物培養実験の準備を進めている。本実験も室内実験という点では前述の高温培養実験と同じではあるが、その性質の違いから本節で分けて紹介する。

高温高压培養実験と同様に、実験系内に新堀油田の油層水を基に培養した微生物培養液、八橋油田の原油を投入し高温高压条件で微生物を培養する(図 10)。岩石コアを培養の場として用いる点のみが、前述の高温高压培養実験と異なる。孔隙内で微生物と原油の接触面積が増大し、より効率的に原油分解反応が進行することを期待している。実験のデザインに当たっては、研究対象の微生物が嫌気性で

図 10 岩石コアを用いた微生物培養実験装置

あること、コア孔隙容量がシリンドラー培養の砂粒による模擬孔隙に比べ小さいこと、の2点に特に注意を払っている。実際の培養実験実施前に、岩石コア孔隙内の嫌気性状況の確認にあたっては、酸化還元指示薬（レサズリン溶液）を用いた手法、嫌気性のギ酸分解菌の反応を利用した手法などを組み合わせ、その検証を行っている。また、分解反応に伴い生成される二酸化炭素のEOR効果、分解反応後の原油性状変化による残留原油の回収率向上効果などを確認するため、原油分解メタン生成反応が安定した段階でコアフラッド実験を行うことを検討している。

5. 簡易メタン生成モデルを用いた生産性試算

微生物原油分解メタン生成プロセスを、実際にフィールドに適用した場合に鍵となる経済性要素の抽出、併せてメタン生産性試算を行うための評価モデル構築を各種実験と並行して実施している。現時点では詳細なモデルを構築するに足る実験データが不足していることから、いわゆる油層シミュレーションモデルは用いず、微生物による原油分解反応領域に限定した形のタンクモデルをベースに評価モデル構築を行っている。同モデルでは、初めに原油分解対象領域を仮定し、次に原油分解のために必要な油層水中の必要微生物濃度をラボ実験から推定した。必要微生物濃度から、投入すべき培養液の量・濃度を計算し、最後に培養液投入からの時間・残存原油量、微生物と残存原油の接触効率などの関数とすることで1坑井あたりの総メタン生成

図 11 坑井毎メタン生成レート計算結果の例
 (上：モデル概要、下：有効半径毎メタン生成レートの変化)

速度を計算する。高温高压培養実験の結果をメタン生成速度のモデル入力値として用い、貯留層データには八橋油田の代表的な値を用いることで坑井スケールでのメタン生成速度を予測している（図 11）。

実際のフルフィールドスケールの計算においては、地下に投入した微生物の拡散・移動現象、また反応副産物である二酸化炭素のEOR効果を評価する必要があるため、将来的には三次元シミュレーションモデルなどを用いたより詳細な検討が必要になる。今後も高温高压培養実験、岩石コア微生物培養実験、さらにフィールドパイロットの結果と照らし合わせながら、本課題に継続して取り組む予定としている。

6. フィールドパイロットに向けて

これまでの実験で得られた知見を基に、国内油田での本技術のフィールドパイロット実施の検討のため、作業計画の立案に取り組んでいる。実際のフィールドパイロット実施に当たっては数多くの検討課題が存在するが、そのうち代表的なものについて以下に挙げる。

① 微生物を含む油層水の採取・保管・移送方法

嫌気性微生物を扱うため、採取した微生物の保管・移送は空気に触れない状態で実施する必要がある。パイロットという性質上、既存の生産設備を活用し、作業に伴う追加コストを極力減らす方針としている。

② 地上での微生物培養方法および坑井への圧入方法

採取した油層水は、そのままでは微生物濃度が低く、効率的な原油分解反応を引き起こすことができない。そのため、採取した油層水を基に、事前に大容量・高濃度の微生物培養液を作液できれば効率性改善となる。

現在、ラボでの微生物大量培養で一般に用いられることの多い、ジャーフェーマンターによる培養試験を計画しており、パイロット実施の際には、この過程で得られた知見を活用し、より大規模な培養を行うことを想定している。

③ 原油分解モニタリングの方法

本研究で対象としている原油分解メタン生成反応では、副次生成物として二酸化炭素が発生する（図 3）。その一方、パイロット対象と想定している油田には元来二酸化炭素がごく少量しか存在しないため、原油分解反応の有無を簡便に確認するための指標として採取試料中の二酸化炭素を用いることを検討している。これまでのラボ実験結果では、原油分解反応時にメタン生成とともに、体積比でメタンのおよそ 25% 程度の二酸化炭素が生成されることを確認している。副次生成物の炭素同位体比測定などとも組み合わせながら、より信頼度の高いモニタリングプランを検討している。

④ 原油分解に伴う二酸化炭素処理方法

前述のとおり、原油分解反応に伴い二酸化炭素が生成される。1坑井あるいは小規模パイロットの規模では、二酸化炭素生成量は生産操業上問題にならない程度に低いと想定されるが、今後の検討課題の1つとしてパイロット規模に応じた二酸化炭素処理方法について調査を行っている。

温度圧力条件にもよるが、1 坑井程度の規模であれば、一般的な芳香族ポリイミド膜を用いた単一ユニットで十分処理可能と想定している。

7. おわりに

高温高圧条件での原油分解微生物培養実験の結果から、国内油田間での微生物コミュニティの移植、すなわちバイオオーグメンテーションにより、貯留層条件で原油分解メタン生成反応を人為的に促進できることが確認された。当研究グループでは、本手法を国内油田への EOR 技術として適用することを最終目標に、フィールドパイロットに向け岩石コアを用いた微生物培養実験および原油分解挙動の調査、フィールド適用時のメタン生成速度推定のための評価モデルの構築などに引き続き取り組む予定である。

謝 辞

本共同研究に携われた共著者および共著者以外の多くの方々に対し、深く感謝の意を表します。また本稿の執筆に当たり、シンポジウムでの発表の機会を与えて頂いた、石油技術協会の関係者の皆様に厚く御礼申し上げます。

引 用 文 献

- Aitken, C. Y., Jones, D.M. and Larter, S.R., 2004 : Anaerobic hydrocarbon biodegradation in deep subsurface oil reservoirs. *Nature*, **431**, 291–294.
- Gieg, L.M., Duncan, K.E. and Suiflita, J.M., 2008 : Bioenergy Production via Microbial Conversion of Residual Oil to Natural Gas. *Applied and Environmental Microbiology*, **74**(10), 3022–3029.
- Jones, D.M., Head, I.M., Gray, N.D., Rowan, A.K., Aitken, C.M. and Bennett, B., 2008 : Crude-oil biodegradation via methanogenesis in subsurface petroleum reservoirs. *Nature*, **451**, 176–180.
- Waseda, A. and Iwano, H., 2008 : Characterization of natural gases in Japan based on molecular and carbon isotope compositions. *GEOFLUIDS*, **8**(4), 286–292.
- Maeda, H., Miyagawa, Y., Ikarashi, M., Mayumi, D., Mochimaru, H., Yoshioka, H., Sakata, S., Kobayashi, H., Kawaguchi, H. and Sato, K., 2010a : Research for Microbial Conversion of Residual Oil into Methane in Depleted Oil Fields to Develop New EOR Process, SPE-138135-MS.
- 前田治男・宮川善洋・高林克百・藤原和弘・向谷 司・服部嘉行・鹿野早苗, 2010b : 枯渇油田への圧入 CO₂ と地下微生物作用による原油のメタン変換研究, 石技誌, **73**(6), 496–505.
- 前田治男・五十嵐雅之・宮川善洋・小林 肇・佐藤光三・眞弓大介・坂田 将, 2011 : 地下常在微生物を利用した二酸化炭素のメタン変換システム構築, 石技誌, **76**(6), 530–537.
- Mayumi, D., Doling, J., Sakata, S., Maeda, H., Miyagawa, Y., Ikarashi, M., Tamaki, H., Takeuchi, M., Nakatsu, CH. and Kamagata, Y., 2013 : Carbon dioxide concentration dictates alternative methanogenic pathways in oil reservoirs. *Nature Communications*, **4**(1998).
- Maeda, H., Ikarashi, M., Wakayama, T., Yonebayashi, H., Mayumi, D., Tamazawa, S., Tamaki, H., Sakata, S., Kamagata, Y., Iida, T. and Osaka, N., 2017 : Realization of ULTRG (Unrecoverable Liquid Fuels to Recoverable Gaseous Fuels) as an Innovative Microbial EOR. SPE-188089-MS.