論 文

嫌気性菌の油層内培養による石油の増進回収に関する基礎的研究

—9A 菌を用いた油増進回収実験における排油挙動の検討—

米林 英治*・洪 承燮**・木下 睦***
榎本 兵治***・千田 信***

(Received July 16, 1996 ; accepted November 27, 1996)

Fundamental studies on MEOR with anaerobes
—Investigation of oil recovery mechanisms
at flooding experiments using strain 9 A—

Hideharu Yonebayashi, Hong Cheng-Xie,
Atsushi Kishita, Heiji Enomoto and Tadashi Chida

Abstract : In the previous paper, it was reported that 30% of residual oil after water flooding was recovered by injecting strain 9 A in a sand pack flooding experiment. It was the best recovery case among other tests with 9 microbes. However, the mechanism of improved recovery was not referred in detail. In this paper, some investigations of recovery mechanisms are reported. Sets of following two-step flooding were carried out ; (1) water flood and (2) microbial flood using the same sandpack which was resaturated with oil after the water flood. Both experimental procedures basically followed the method proposed in the previous paper. Data of injection pressure, produced water and oil production history were taken at each experiments and were compared to investigate oil recovery mechanisms.

Application of strain 9 A reduced the period of oil production and increased the volume ratio of produced oil and injected water by 5 times in comparison to the water flood. In addition, oil was produced right after the pressure was released after cultivation. One of the reasons for this recovery was attributed to the increase of driving energy by gas metabolite. But the produced oil at the next flooding stage might be caused by some complex factors. One of main factors was estimated that the produced gas and some metabolites made foams in porous media and these foams prevented early break through of water.

Key words : MEOR, flooding experiment, recovery, mechanism, gas production, foam

* 東北大学大学院工学研究科資源工学専攻学生 (現 ; 石油
団石油開発技術センター) Graduate Student (Present ;
Technology Research Center, Japan National Oil
Corporation)

** 東北大学工学部資源工学科 (現 ; 中国吉林省油田管理局)
Department of Resources Engineering, Tohoku
University (Present ; China Jilin Province Oilfield
Administrative Bureau)

*** 東北大学工学部地球工学科 Department of Geoscience
and Technology, Tohoku University

1. は し が き

微生物を油層内で増殖させ、原油増進回収に利用する
という微生物攻法 (MEOR) は 1926 年に Beckman¹⁾ に
より提唱され、Zobell²⁻⁴⁾ によって実質的な研究が行わ
れて以来、多くの研究者が基礎研究を実施しており、さ
らにフィールドテストの報告も数多くなされている⁵⁾。
本攻法の最大の特徴はその経済的優位性にあると言わ
れ、今後より一層の注目を集めることが予想される。し
かし、油層中での微生物反応機構やその増進回収メカニズ

ムに関する知見はいまだ不十分であり、多くの基礎研究が必要な状況にある。そこで、著者らは有用な嫌気性菌の探索・収集と、それらの有用性の評価方法の確立およびその方法による微生物の能力評価を目的とし、有用嫌気性菌のスクリーニング、その機能性の評価方法の検討^{6,7)}を行い、さらに、フラッディング評価法の確立と供試菌の MEOR 能力評価を行った⁸⁾。本報では、それらの研究において増進回収効果が顕著（水攻残留油に対して約30%）であった 9 A 菌の場合について油回収時の排油挙動の解析を行い、生産性からみた 9 A 菌の効果と増進回収メカニズムについて検討した結果を報告する。

2. フラッディング実験における排油挙動

2.1 概要

前報⁸⁾においてフラッディング試験を実施した結果、ブランク試料を除くすべての場合（6種類の単離菌と2種類の混合菌）について増回収を図ることができた。しかし、これらのサンドバックから産出した流体の界面張力から得られたキャピラリーナンバーは 10^{-6} のオーダーであり、界面張力の低下のみが油回収率向上に寄与したとは考えにくい。また、模擬油層には均一になるよう充填したサンドバックを用いたこと、産出した培地中に高濃度の菌体が確認されたこと、および産出培地の粘度が 1.2~1.5 cP (20℃) であったことから、菌体自身のブラッキングによる掃攻率改善や粘度上昇などの効果によるものとも考えにくい。そこで、増回収が図られた機構を明らかにするために水圧入による回収時の排油挙動を解析することとした。実験は 9 A 菌、培地 I および灯油を用い、前報⁸⁾において報告したフラッディング試験法に従った。解析では、水圧入による一次回収実験（以下、水攻回収実験と称す）および微生物圧入・培養後の増進回収実験（以下、単に増進回収実験と称す）において、圧入水量、油と水の流出量および圧入側と産出側の差圧を測定し、圧入流体および産出流体の流れ特性、圧入水の利用率および産出指数に関する検討を行った。なお、培地 I とは蒸留水 1,000 ml に対しモラセス 40.0 g とブイヨン 8.0 g を添加したものであり、9 A 菌を MEOR に用いた場合に最も効果が期待されると評価された培地⁸⁾である。また、培養期間中を除くと、すべての実験・操作は室温（約20℃）で行った。

2.2 実験装置および方法

実験装置には前報⁸⁾で報告した直径 50 mm、長さ 500 mm のサンドバックを使用した。使用した珪砂の平均粒径は 110 μm である⁹⁾。実験は二段階に分けて実施した。すなわち、水攻回収実験とその後初期状態に戻した

同一サンドバックによる増進回収実験（微生物攻法）である。これらは前報⁸⁾の方法に従って行ったが、後者の過程で菌体を圧入後、再び油を不動水飽和率に達するまで圧入する点が異なる。そして、両実験の油回収時に産出される水および油の量、圧入側と生産側の圧力差を経時的に測定した。なお、培養前の培地、灯油および水の粘度はそれぞれ 1.2 cP, 1.7 cP, 1.0 cP (20℃) である。

2.3 実験条件および結果

2.3.1 水攻回収実験

サンドバックの初期条件および実験結果を表 1 に示す。実験は水圧入レートを一定とし、生産側を大気開放とした。本実験では水の圧入開始と同時に油が産出し始め、初期段階にかなりの油の回収が図られ、その後圧入水量が約 4.0 PV に達するまでごくわずかなずつ産出し続けるという挙動を示した。

圧入圧力（圧入側と生産側の差圧）の経時変化を図 1 に示す。圧入圧力は水圧入開始後約45分に最高圧力 0.23 kgf/cm² を示し、その後徐々に低下していった。

表 1 水攻回収実験における初期条件と実験結果

充填層容積	[mL]	1,400
孔隙容積	[mL]	515
孔隙率	[%]	37
絶対浸透率	[darcy]	3.2
初期灯油量	[mL]	430
初期灯油飽和率	[%]	83
水押し流量（平均）	[mL/min]	5.9
水押し量	[PV]	6.1
回収率	[%]	69

図 1 圧入圧力の経時変化

これは、水の圧入開始初期には油を掃攻するのに高い圧力勾配が必要であり、模擬油層中の残留油の減少に伴い置換水の圧入圧力が減少したためと考えられる。この水圧入開始後45分間は産出される液中に水はほとんど含まれず、油の産出が進行し、その後水の産出量が増加するに伴い圧入圧力が低下しており、上記の考察を裏づけている。回収実験終了時点において圧入した総水量は6.1 PV に達し、実験時間は530分に及んだ。油回収率は69%まで上昇し、差圧は0.15 kgf/cm² まで低下した。

2.3.2 増進回収実験

サンドバックの初期条件および実験結果を表2に示す。水攻回収実験終了後、9 A 菌の菌体懸濁液（培地 I）を2.9 PV 圧入し、その後再び灯油を3.2 PV 圧入して水攻回収実験実施前の油層状態を再現した。油圧入で置換された量は290 ml であり、これより油層中の油量を求めると422 ml となり、水攻回収実験の場合の初期油量よりわずかに少なくなったが、この程度の差異は無視できるものと判断した。

引き続き温度30℃で12日間培養後、再び回収実験を行った結果、次のようになった。まず、前報⁹⁾で報告したように、培養後の油層内圧力は約3気圧であった。実験を開始する前にその油層内を観察したところ、油層内には気相が存在している様子は見られなかった。次に増進回収実験に移り、密閉していた系を開放したところ灯油のみ（70 ml）が内圧により自然に産出した。これは9 A 菌が発生したガスによるものと考えられる。ガスが排出されて大気圧になった後のサンドバックの内部を観察すると、前報⁹⁾でも述べた気体飽和率が高い部分と液体飽和率が高い部分の層状の縞が見られた。水圧入による回収は油の自然排出が完全に終了した後に開始した。この場合も先の水攻回収実験と同様に圧入開始直後の初期段階にかなり油回収が進行した。そして本実験では、圧入水量約0.6 PV で油回収はほとんど終了した。この

間、アクリルパイプ内に作製した模擬油層内の圧入水先端部分の進行状況を観察したが、水は均等に前進していた。そして、実験終了後に再びサンドバック内を観察したところ、先ほどの縞模様は消失し、珪砂内に残留しているガスは目視では認められなかった。この増進回収実験における差圧の経時変化も図1に示した。これによると、水攻回収実験の場合に比べて圧入開始後急激に圧力が上昇し、最高圧力は0.26 kgf/cm² に達した。その後は徐々に低下して、実験終了時点では0.11 kgf/cm² となり、水攻回収実験の場合より低い値であった。この差圧の経時変化の挙動は、水攻回収実験の場合と同様の理由により説明される。ここで、最高圧力が水攻回収実施時よりも高かったのは、置換された油の量が菌体を圧入しない場合と比較して多かったためと考えられる。

以上の結果より増進回収実験における排油挙動について考察すると、まず、増進回収の第一の要因は代謝ガスによる排油エネルギーの増大である。次に、圧入された水の先端において孔隙内にトラップされていた発生ガスが気泡となって相対的に圧入流体の見掛けの粘度が高くなり、これによって易動度の改善が図られるとともに模擬油層の浸透率のミクロな不均一性を是正して早期のブレイクスルーを防ぐ効果を示したと考えられる。差圧の経時変化で初期の段階に高い値を示しているのは、前述の理由のほかに、水を圧入開始後気泡が形成され、これが押し出される間は高い圧力勾配が要求されるためであり、その後の差圧の低下は、孔隙内から気泡が押し出されてしまったことも関係していると考えられる。以上の要因のほかに、二酸化炭素の溶解による油の膨潤および粘度変化などが複合して油回収に寄与していることも一般的には考えられることであるが、油層圧力がそれほど高くないため二酸化炭素の油への溶解の影響は小さく、油の粘度低下および油層水（培地）の粘度上昇も大きくないので、本実験ではこれらの影響は大きくないと考えられる。

最終的な回収率は66%であり水攻回収実験の69%よりもわずかに低かったが、可採油の回収に要した時間は約70分（圧力解放時に流出した70 ml の油を平均水押し流量で圧入・回収したとした場合に要する時間は12.5分であり、これを考慮しても約83分）であり、水攻回収実験（66%の油回収率を得るのに要した時間は134分）と比較して極めて短期間で油回収が終了しており、実操業の観点からみると、最終的な回収率の低さを相殺しても十分な MEOR の効果が得られたと考えられる。

2.4 増進回収実験の設定条件に関する検討

前述のように、培養後油層内には気相の形成が見られなかったが、水圧入による増進回収実験は培養後油層を

表2 増進回収実験における初期条件と実験結果

供 試 菌	9 A
圧入培地菌体濃度 logC [cells/ml]	4.9
圧入培地	I
初期灯油量 [ml]	422
初期灯油飽和率 [%]	82
培養期間 [days]	12
水押し流量（平均） [ml/min]	5.7
水押し量 [PV]	6.4
回 収 率 [%]	66

大気圧に解放し、発生ガスによる油の自然排出が終了した後に開始した。すなわち、油層内に気相が形成された後に水を圧入して油を回収した。これは、研究の第一段階として、実験を大気圧下で行うことにしたためである。9 A 菌の発生ガスによる油層内の圧力上昇は約3気圧であるので、油層を開放したことによる圧力の低下は絶対値としてみると大きくはない。しかし、気相が形成され、これが増進回収機構に関係していると考えられるため、実油層の場合との類似性を検討しておくことが必要である。

長期の生産により溶解ガスが少なくなった小規模油層でかなり広範囲に実施した MEOR の場合について油層内の状況を推測すると、すでに述べたように微生物の発生ガスによる圧力の上昇速度は高くなく、多くの場合油層圧力は数十気圧以上であるので、圧力の上昇で流動が起こる前に発生ガスは油に溶解し、培養後に気相が存在しない場合もありえよう。しかし、多くの油層については多少なりとも遊離ガスが存在すると考えられ、また、遊離ガスが存在しなくても溶解ガスは飽和状態にあるので、微生物により発生する程度のガス量（水相体積の数倍以上）で気相が出現する場合もあるものと考えられる。

以上のように、増進回収機構は油層条件によって異なることも推定されるので、MEOR の実施にあたっては当該油層条件を取り入れた評価実験が必要と考えられるが、これについては今後の課題としたい。

3. 排油挙動の解析

3.1 圧入流体と産出流体の流れ特性の解析

実際のフィールドにおいて油の産出は短期間に行われるほうが有利である。それは、最終的に回収される油の量が同じであっても、回収が長期間に及んだ場合、コスト面で不利な要素となるためである。そこで、次の値を用いて、本実験における圧入水と産出油の流れ特性の検討を行った。

$$\Sigma Q_W = \Delta Q_{W1} + \Delta Q_{W2} + \cdots + \Delta Q_{Wn} :$$

水の累積流出量 [ml]

$$\Sigma Q_O = \Delta Q_{O0} + \Delta Q_{O1} + \Delta Q_{O2} + \cdots + \Delta Q_{On} :$$

油の累積回収量 [ml]

$$F_j = \Delta Q_{Wj} / \Delta Q_{Oj} \quad j=1, 2, \cdots, n :$$

水と油の産出比 [-]

$$R = \Sigma Q_O / N : \text{回収率} [\%]$$

ΔQ_{O0} : ガスの解放により流出した油量 [ml]

N : 初期油量 [ml]

解析の結果を図2および図3に示す。まず、油回収量と水流出量の累積値間関係を見ると、水攻回収実験

図2 累積油回収量と累積水流出量との関係

図3 油回収率と水/油産出比との関係

の場合、初期の段階に大きな変化が見られ、この段階にかなりの油の回収が進んだことを示している。しかし、後半部は実験終了時まで緩やかな上昇を示しており、あまり効率的な回収になっていない。一方、増進回収実験の場合は初期の立ち上がりさらに大きく、より短期間に油の回収が進んだことを示している。また、図3に示す油回収率と産出比との関係においても同様の傾向が見られる。さらに、図3には同程度の回収率が得られるまでにどの程度の時間が必要であったかを、水攻回収と増進回収のおおのの場合について示しているが、約66%の回収率を得るのに前者では134分を要しているのに対し、後者では70分（あるいは83分）を要したのみである。微生物攻法の実施により回収期間を5~6割に短縮できたということは実操業の観点からみて、大きな効果のひとつと考えられる。以上の結果より、増進回収実験では圧入水が油を高効率で掃攻していることが分かっ

た。一般に、水蒸気や炭酸ガスなどの気体を微小な気泡にして油層に圧入し、気体の液体に対する易動度比を低下させて掃攻率を改善するフォーム攻法があるが、上述の傾向はこの攻法での挙動に類似している。

3.2 圧入水の利用率に関する検討

微生物攻法は菌体および栄養源を圧入し、いくらかの培養期間の後に水を圧入して増進回収を図る。ここで、圧入する水に対して産出される油の量が多ければ、油の回収は効率的に行われていることになる。そこで、ここでは、次の値を用いて圧入水の利用率について検討した。

$$\Sigma Q_O / \Sigma Q_W :$$

油の累積回収量と水の累積流出量の比 [—]

$$\Sigma Q_O / \Sigma Q_{W_i} :$$

油の累積回収量と累積圧入水量の比 [—]

$$R_r = R / R_M : \text{可採油回収率} [\%]$$

$$R_M : \text{最終的な油回収率} [\%]$$

$$\Sigma Q_{W_i} = \Delta Q_{W_i1} + \Delta Q_{W_i2} + \cdots + \Delta Q_{W_in} :$$

累積圧入水量 [ml]

$R_M = 66\%$ とした場合の解析結果を図4および図5に示す。一般に、同じ可採油回収率 R_r に対して $\Sigma Q_O / \Sigma Q_W$ および $\Sigma Q_O / \Sigma Q_{W_i}$ が大きいほうが水の利用率が高く、油の回収には有利である。両図とも増進回収実験のほうが大きな値となっており、水の利用率は飛躍的に上昇していることが分かる。実際に100%の可採油回収率を得るのに必要であった累積圧入水量も図4に示したが、水攻回収の場合は2,160 mlであったのに対し、増進回収では410 ml（ガスの解放によって流出した油量70 mlを水圧入で回収したとしても480 ml）と約1/5の圧入水量ですべての可採油を回収することができた。このことは、微生物攻法の実施により、水の利用率を5倍にすることができたということを意味している。

3.3 産出指数に関する検討

ここでは次の産出指数を求め、総合的に検討を加える。

$$\Delta Q_L / \Delta P :$$

回収液全体の産出指数 [(ml/min)/(kgf/cm²)]

$$\Delta Q_O / \Delta P : \text{油の産出指数 [(ml/min)/(kgf/cm²)]}$$

$$\frac{\Delta Q_O / \Delta P}{\Delta Q_L / \Delta P} : \text{油の無次元産出指数 [—]}$$

ΔQ_L : ある時間内における液体の産出量
[ml/min]

ΔQ_O : ある時間内における油の産出量
[ml/min]

ΔP : 圧入端と生産端の圧力差 [kgf/cm²]

解析の結果を図6～8に示す。産出指数は流体が生産

図4 可採油回収率と累積油/水産出量比の関係

図5 可採油回収率と累積油回収量/圧入水量比との関係

図6 油回収率と全産出液の産出指数との関係

図7 油回収率と回収油の産出指数との関係

図8 油回収率と回収油の無次元産出指数との関係

される際の能力を示す指数であり、この値が大きいほうが生産性は良好と判断できる。まず回収液全体の産出指数 $\Delta Q_L/\Delta P$ についてみると、回収が進んだ後半部分では水攻回収の場合が大きな値となっている。しかし、油回収率58%においては菌を圧入したほうが $\Delta Q_L/\Delta P = 41.9$ と最も高い値であり、油の回収初期段階での高生産性を示している。次に、油の産出指数(図7)および無次元産出指数(図8)についてみると、いずれも増進回収の場合が同じ油回収率に対して大きな値となっており、菌の利用によって生産性が改善されていることが明らかになった。

また、以上に述べた水押しにおける種々の解析による排油挙動の検討はMEORの効果を評価する指標のひとつとして有効と考えられる。

4. ま と め

サンドバックによる模擬油層を用いて、水攻法および9A菌の発生ガスにより油層内に気相が形成された場合のMEORのフラッディング実験を行い、菌の利用の有無による排油挙動について、圧入流体と産出流体の流れ特性、圧入水の利用率および回収液と油の無次元産出指数により検討を行った結果、以下のことが分かった。

- (1) 水攻回収実験および微生物を利用した増進回収実験ともに、差圧の経時変化は水圧入開始後の初期段階に高い圧力を示し、その後徐々に低下するという挙動を示したが、その最高差圧は微生物攻法の場合が水攻法実施時よりも高い値を示し、置換効率向上の可能性が示された。
- (2) 9A菌を油層内培養した場合、水圧入レート一定の条件下で同じ油回収率を得るのに必要な時間が水攻回収実験の場合の5~6割に短縮され、回収の効率化が図られた。
- (3) さらに、圧入水利用率が水攻回収実験の場合の約5倍と飛躍的に上昇した。
- (4) 産出指数に関する検討を行った結果、9A菌を利用した場合のほうが大きな値が得られ、生産性の向上が図られたことが分かった。
- (5) 以上の結果が得られた増進回収機構のひとつとして、9A菌が模擬油層内で発生したガスが気泡となり、油の置換効率の改善が図られたということが考えられる。
- (6) 微生物による増進回収機構は油層条件、特に油層圧力によって異なることが考えられるため、実油層を想定したフラッディングによるMEORの評価実験では、当該油層条件を取り入れた実験条件の設定が必要である。
- (7) フラッディング実験における排油挙動の解析はMEORの効果を評価する指標のひとつと考えられ、バイアル瓶を用いたスクリーニングおよびフラッディング実験による増進回収率の検討と併せて総合的にMEORの性能評価を行えば、有用菌の探索から評価までの検討が可能である。

引 用 文 献

- 1) Beckman, J. W., 1926 : Action of bacteria on mineral oil. *Ind. Eng. Chem., News Ed.*, 4, 10.
- 2) Zobell, C. E., 1946 : Bacteriological process for treatment of fluid-bearing earth formations. *U. S. Patent*, No. 2, 423, 278.
- 3) Zobell, C. E., 1947 : Bacterial release of oil from oil-bearing materials. *World Oil*, 126, 36-47; 127,

35-41.

- 4) Zobell, C. E., 1926 : Bacterial release of oil from sedimentary materials. *Oil and Gas Journal*, 46, 62-65.
- 5) Lazar, I. I., 1991 : MEOR field trials carried out over the world during the last 35 years. *Microbial enhancement of oil recovery - recent advances ; proceedings of the 1990 international conference on microbial enhanced recovery*, E. C. Donaldson (Ed.), Elsevier.
- 6) 米林英治・洪承燮・木下睦・榎本兵治・千田 信, 1996 : 嫌気性菌の油層内培養による石油の増進回収に関する基礎的研究—菌の採取と集積培養菌のスクリーニング—, 石技誌, **61** (4) 311-318.
- 7) 米林英治・洪承燮・木下睦・榎本兵治・千田 信, 1996 : 嫌気性菌の油層内培養による石油の増進回収に関する基礎的研究—単離菌の機能性評価—, 石技誌, **61** (5) 443-451.
- 8) 米林英治・洪承燮・木下睦・榎本兵治・千田 信, 1997 : 嫌気性菌の油層内培養による石油の増進回収に関する基礎的研究—サンドバックを用いた MEOR 評価実験—, 石技誌, **62** (3) 195-202.
- 9) 竹田正俊・榎本兵治・千田 信, 1990 : 後退式火攻法に関する基礎的研究 (第 1 報)—酸素供給速度の影響—, 石技誌, **55** (5) 315-324.