

氏名	菅井 裕一 <small>すがい ゆういち</small>
授与学位	博士(工学)
学位授与年月日	平成13年3月26日
学位授与の根拠法規	学位規則第4条第1項
研究科, 専攻の名称	東北大学大学院工学研究科(博士課程)地球工学専攻
学位論文題目	水溶性ポリマー生産細菌による石油増進回収に関する基礎的研究
指導教官	東北大学教授 洪 承燮
論文審査委員	主査 東北大学教授 洪 承燮 東北大学教授 榎本 兵治 東北大学教授 千田 信 東北大学助教授 井上 千弘

### 論文内容要旨

石油は近代社会のエネルギーの根幹をなすものであり、また化学製品の重要な原料である。今後の石油の需要量の確保と安定供給のためには、石油増進回収法（Enhanced Oil Recovery；以降 EOR と称する）の確立が重要である。

EOR としてはこれまでにいくつか提案され、その大半は技術的には確立されつつあるが、経済性と適応油層条件の制約によりその実用化が困難となっているのが実情である。

このような状況の中、微生物を油層に圧入して油層内で増殖、代謝活動を行わせ、増殖した微生物自体ならびに代謝産物（ポリマー、界面活性物質、酸、ガスなど）の効果により石油の増進回収を図る微生物 EOR（Microbial Enhanced Oil Recovery；以降 MEOR と称する）が注目されている。これは、MEOR が様々な機能を有する微生物を利用することから、その効果が多様であるため適応範囲が広く、安価な栄養源を用いることにより経済性においても期待されているためである。

しかし、従来の MEOR の研究成果を考察すると、他の EOR に比してその石油増進回収機構が複雑であり、学問的にも多分野を跨っているため、いまだ解明されていない基礎的事項が多く、今後 MEOR を実用化するためにはいくつかの項目について明らかにする必要がある。特に基礎的検討項目として、微生物工学的研究と油層工学的研究の両者による油層内での微生物の増殖・代謝挙動ならびに流体の流動挙動の解析と石油増進回収機構の解明が重要であると考えられる。また、基礎的研究の段階では、微生物をその機能により分類して、一つの微生物の主となる機能に焦点を絞った正確な評価が重要であると考えられる。

一方、微生物の機能に着目して MEOR の実用化を目指す優先順を検討すると、水攻法を実施している油層における掃攻率と置換効率の両方について改善することが期待される機能を有する微生物の利用がまず挙げられる。すなわち、水溶性ポリマー生産細菌を用いた MEOR は、優先的に検討すべき価値のある対象であると考えられる。

このような背景のもとに、本研究は石油増進回収法の一つとしての MEOR の実用化を目指した基礎的研究であり、水溶性ポリマー生産細菌を用いた MEOR における油層内の挙動解析と増進回収機構の解明を目的としたものである。

このような目的で行った研究をまとめた本論文は以下の 6 章から構成されており、その概要は次の通りである。

第 1 章は緒論であり、本研究の背景ならびに研究目的について述べたものである。

第 2 章では、本研究で水溶性ポリマー生産細菌の供試細菌として用いた *Clostridium sp.* TU-15A (以降 TU-15A と称する) の基本的な性質の把握を目的とした、微量酸素、pH、栄養源濃度、微小孔隙空間、原油の存在などの培養環境の影響の解明、ならびに、MEOR のシミュレーター開発のための、TU-15A の増殖、栄養源の消費および水溶性ポリマー生産に関する実験と結果の数式化を行っている。

TU-15A は栄養源として用いたモラセス (廃糖蜜) のみを基質とする単純な培地で、水の 70 倍以上まで粘度を増加させる極めて高い能力を有する細菌であり、これまでに当研究室で得られた他の水溶性ポリマー生産細菌と比して、実用性と石油増進回収効果が最も期待できる細菌であることから、本研究の供試細菌としている。

培養実験の結果、TU-15A は酸素濃度約 0.7% 以下、pH 範囲 5.5~9.0 において増殖可能であり、モラセス濃度に比例して培養液粘度を増加させることを明らかにしている。さらに、微小孔隙環境下、原油の存在下ならびに油層水先住細菌との競合条件下などの油層内における特異的な環境下においても増殖して水溶性ポリマーを生産することを明らかにしている。

また、MEOR のシミュレーター開発のための TU-15A の増殖と代謝に関する数式化では、細菌濃度、栄養源および水溶性ポリマーの 3 項目について検討している。

まず細菌濃度については、TU-15A の増殖過程を、誘導期、対数増殖期ならびに死滅期の 3 つに大別して数式化を行っている。特に対数増殖期における細菌濃度の増加については、回分培養系における細菌の増殖の数式化によく用いられる Moser の式を用いて数式化を行っている。

また栄養源については、その代表としてモラセスを栄養源とみなし、対数増殖期のみで消費されるものとしている。実験で増殖収率を求めて栄養源消費の数式化を行っている。

さらに水溶性ポリマーは、実験結果に基づき、TU-15A の死滅により細胞外に産出され、培養条件に関係なく 1 細菌当りの産出量は一定であるというモデルとして数式化を行っている。

以上の数式により、細菌の増殖・代謝から培養液粘度の変化の実験結果がよく再現され、細菌の挙動と油層流体の流動性に関するパラメーターの定量的関係を明らかにしている。

第 3 章では、水溶性ポリマー生産細菌を用いた MEOR における油層内の挙動解析と、石油増進回収機構の解明のためのシミュレーターの開発として、その基本的考え方、数学モデルならびにその解法について述べている。

まず本研究で開発するシミュレーターの基本的な考え方の概要は以下のようである。

- ① 水攻法に適している油・水の 2 相流体により飽和されている油層に細菌と栄養源を圧入する。
- ② 圧入井から油層内に圧入された細菌は、油層内の水相で栄養源を消費しながら増殖し、栄養源がなくなると死滅を始める。その過程において代謝産物である水溶性ポリマーを産出する。また、細菌は油層内で水相とともに流動する。
- ③ 栄養源は、圧入井から油層内に圧入され、細菌により消費される。栄養源は水溶性であり、水相に溶解

して水相とともに流動する。

- ④ 油層内で産出された水溶性ポリマーは、水相に溶解し、水相の流動性を変化させる。これにより水相は Newton 流体から擬塑性流動特性を有する非 Newton 流体へと変化する。そのため、水相の粘度、油・水相対浸透率、不動水飽和率ならびに残留油飽和率が水溶性ポリマー濃度の変化にともなって変化する。また、水相の粘度は流速の関数にもなる。
- ⑤ 細菌が栄養源を消費して、代謝産物を産出すると仮定したことにより、これらはすべて水相中の現象となり、水相全体の質量保存法則が保たれる。
- ⑥ 上記のプロセスにおいて、油は細菌の活動と直接の係わりを持たない。したがって、油はその組成が変化しない 1 相 1 成分として扱われる。

このような考え方から、本研究で開発するシミュレーターは油・水の 2 相と、油・水・細菌・栄養源ならびに代謝産物の 5 成分から成る 2 相 5 成分モデルとなる。したがって、Darcy の法則に基づき、各成分について 5 つの基本方程式を導いている。

さらに、水溶性ポリマー生産細菌による MEOR における油層内の挙動解析と石油増進回収機構の解明のために必要十分な油層として、厚さの一定な水平 2 次元油層で数値実験を行うこととしている。したがって、基本変数である圧力、飽和率、細菌濃度、栄養源濃度ならびに代謝産物濃度の 5 つは、基本方程式の有限差分による離散化と、IMPES (Implicit Pressure Explicit Saturation) 法を用いて組み込まれているコンピューターモデルにより解が求められている。

このように、微生物の油層内培養、代謝産物の増進回収機能、および石油回収プロセスを取り入れたモデルは従来にない新しいものである。

第 4 章では、まず条件の異なる 2 本の 1 次元油層を並列に連結した擬平面油層を用いて、実油層における坑井パターンならびに浸透率の異方性の影響を模擬した室内石油増進回収実験を行い、TU-15A が生産した水溶性ポリマー水溶液の石油増進回収能力の評価を行っている。また、この実験における結果と、第 3 章で開発したシミュレーターによる数値実験結果との比較により、本研究により開発された 2 相 5 成分モデルの妥当性について検討している。さらに数値実験を行い、油層内における微生物の増殖・代謝ならびに油層内流体の流動挙動の解析と石油増進回収機構の解明を行っている。

室内石油増進回収実験では、坑井パターンを模擬した実験および浸透率の異方性を模擬した実験ともに初期油量に対して 20% 以上の高い増回収率が得られている。これは、水攻法後に圧入した TU-15A の水溶性ポリマー水溶液が擬平面油層の流体の流動性を調節することによりもたらされたものであり、その高い石油増進回収効果を明らかにしている。

また、シミュレーターの妥当性に関する検討の結果、圧入挙動（圧入圧力、流動性の低い油層への水の流入比）ならびに生産挙動（含油率、回収率）ともに実験結果と計算結果との一致が認められ、このシミュレーターが水溶性ポリマー生産細菌を用いた MEOR における挙動解析と増進回収機構を検討するのに信頼できるものであることを示している。

さらに数値実験では、細菌、栄養源、代謝産物（水相粘度）ならびに飽和率の 4 項目について挙動解析を行い、油層内における細菌の増殖と代謝活動に伴う水相粘度の増加により油層内の細菌ならびに油層流体の分布と流動パターンが変化する挙動を明らかにしている。また、生産流体中の含水率や産出指数などを指標とした石油増進回収機構の解明から、この油層内挙動の変化により石油増進回収が図られる機構を明らかに

している。

このように、MEOR における細菌の増殖、代謝と油層内流体の流動挙動と石油増進回収機構はこれまでの研究では明らかにされていないもので、これらを解析したことも本研究の特徴の一つである。

第5章では、水溶性ポリマー生産細菌を用いた MEOR における油層条件および細菌の圧入・培養条件の影響、さらには油田開発のどの時期に MEOR を実施するのが効果的であるか等について、前述の本研究で開発したシミュレーターによる数値実験により考察している。

油層条件の影響として油層浸透率の均一性が異なる油層において数値実験を行い、浸透性の高低やその分布状況によって増回収率は異なるものの、いずれの油層でも高い増進回収が図られることを明らかにしている。また、油田開発のどの時期においても増回収効果が得られるが、実施時期が早期であるほど増回収も早期に得られ、回収期間の短縮による経済的効果が期待されることを示唆している。

培養条件の影響として、栄養源濃度や細菌・栄養源圧入後の Shut-in 期間の影響について検討しており、MEOR 実施油層における増回収率と経済性を加味した栄養源濃度の設定や、Shut-in 期間の必要性などを明らかにしている。

圧入条件の影響としては、細菌・栄養源の圧入量、圧入レートならびに圧入方式について検討しており、細菌・栄養源の圧入量は栄養源濃度の設定と同様に増回収率と経済性を加味した設定の必要性を、圧入レートには最適値が存在することならびに細菌・栄養源を2回に分けて圧入するなどの圧入方式の違いにより増回収率が変化することなどを明らかにしている。

このように、油層条件、培養条件ならびに圧入条件の変化により、増回収率が影響を受けることなどの貴重な結果を得ている。これらは MEOR の実用化への貢献が期待されるものであると考えられる。

第6章は本論文の結論であり、本研究を通じて得られた成果を総括し、要約したものである。

# 審査結果の要旨

MEOR (Microbial Enhanced Oil Recovery) における油層内挙動解析と石油増進回収機構の解明は、エネルギー源と化学製品の原料の根幹をなす石油の需要を満たすための、石油の増進回収法を確立する上で重要な要素である。本研究は、*Clostridium sp.* TU-15A を水溶性ポリマー生産細菌の供試細菌として用い、油層工学的観点からその機能の評価を行い、新たな MEOR のシミュレータを開発し、それにより初めて総合的に油層内挙動解析と石油増進回収機構の解明を行ったもので、全文6章よりなる。

第1章は緒論であり、本研究の背景、既往の研究および本研究目的を述べている。

第2章では、溶菌時に水溶性ポリマーを放出し、培養液の粘度を水の70倍まで上昇させるなどの優れた機能を持つTU-15Aを水溶性ポリマー生産細菌の供試細菌として選定し、TU-15Aの基本的な性質、並びに油層内への適応性を明らかにしている。さらに、細菌の増殖・代謝に伴う油層流体の流動性の変化を定量的に明らかにしている。得られた関係式はMEORのシミュレータのパラメータ式として次章で用いている。

第3章では、水溶性ポリマー生産細菌を用いたMEORにおける油層内の挙動解析と、石油増進回収機構の解明のためのシミュレータの開発として、その基本的考え方、数学モデルならびに解法について述べている。本研究により開発された油・水の2相、およびオイル・油層水・細菌・栄養源・代謝産物の5成分を基本要素とするシミュレータは、油層への各種媒体の圧入、細菌の油層内増殖と代謝、油層流体の流動性の変化並びに石油回収プロセスを総合的に取り入れた新しいものである。

第4章では、まず、実油層における坑井パターンならびに浸透率の異方性の影響を模擬した室内回収実験を行い、TU-15Aが生産した水溶性ポリマー水溶液は石油増進回収能力が高いことを明らかにするとともに、実験結果との比較により、前章で開発したシミュレータが高精度で実験結果を再現することを検証している。さらに、シミュレータによる解析を行い、油層内における細菌の増殖・死滅・代謝挙動とオイルバンクを含む流体の流動挙動等について総合的に解析して、増進回収機構を明らかにするなど新しい重要な知見を得ている。

第5章では、水溶性ポリマー生産細菌を用いたMEORにおける油層条件および細菌の圧入・培養条件等の影響を、数値実験により考察し、水溶性ポリマー生産細菌を用いたMEORは幅広い油層条件に適応可能であることを指摘している。また、実施に当たり高い増回収と経済効果を得るためには、MEORの実施時期、栄養源の圧入量と濃度、圧入方式、油層での静置培養期間等の圧入・培養条件の最適化が必要であることを指摘し、その最適化方法を提案している。これらも重要な知見である。

第6章は本論文で得られた成果をまとめた結論である。

以上要するに本論文は、水溶性ポリマー生産細菌を用いたMEORについて新しいシミュレータを開発し、油層内挙動と増進回収機構を明らかにしたものであり、油層工学と数値シミュレーションの発展並びにMEORの実用化に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。