

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 17 日現在

機関番号：82626

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2014～2016

課題番号：26709070

研究課題名(和文) CO₂地中貯留と生物的原油分解メタン生成反応を両立する資源創成型CCS技術の開発

研究課題名(英文) Development of microbial enhanced energy recovery technology combining with carbon capture and storage technology

研究代表者

眞弓 大介 (Mayumi, Daisuke)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・地圏資源環境研究部門・研究員

研究者番号：30549861

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,800,000円

研究成果の概要(和文)：枯渇油田を対象としたCO₂地中貯留(CCS)技術の影響を評価するため、国内油田の3ヶ所の生産井から採取した油層水と原油を用いて、現場油層環境を模擬する高温高圧培養実験とCCS後の高濃度CO₂環境を模擬する高温高圧培養実験を進めた。その結果、1ヶ所の油田の現場油層環境の培養条件において生物的原油分解反応が観察された。一方で、CCS環境を模擬する高圧培養実験では、培養初期からCO₂濃度の増加による著しいpHの減少が観察され、それにより原油分解メタン生成反応の阻害効果が観察された。

研究成果の概要(英文)：To evaluate the effect of carbon capture and storage (CCS) technology on methanogenic crude oil degradation in depleted oil reservoirs, we conducted high-temperature and pressure incubation experiments under either in situ and high concentration of CO₂ conditions using production water and crude oil collected from three wells in oil reservoirs, Japan. As the result, we observed biological crude oil degradation associated with methanogenesis under in situ oil reservoir condition using an oil reservoir sample. Meanwhile, the high-temperature and pressure incubation under high CO₂ concentration showed the decrease of pH due to the increase of CO₂ concentration during the incubation. Thus, inhibition effect of methanogenic crude oil degradation was observed in the incubation experiment.

研究分野：地圏微生物学

キーワード：油田 原油分解 メタン生成 CO₂地中貯留

1. 研究開始当初の背景

「エネルギー資源の枯渇」や「地球温暖化」の問題は年々深刻化している。また、国内においても原発に替わるエネルギー資源の開発が急務である。原油は世界のエネルギー生産の 35%を担う最も重要なエネルギー資源である。現在、油田の原油埋蔵量は 15 兆バレルとされるが、現在の技術で採掘可能な資源量は一部で、半分以上を残存した状態で枯渇油田とされる。そのため、枯渇油田の再生化がエネルギー資源の確保の為に必要で、最近では油層に生育する微生物を利用して残存原油を天然ガス(メタン)に変換する枯渇油田再生化技術に注目が集まっている。

嫌気的環境下での微生物による原油からメタンへの変換反応は既に報告されている(Jones et al., 2008, Nature)。しかし、枯渇油田のような高温・高圧の深部地下における原油分解メタン生成メカニズムについては明らかではない。このメカニズムに関する知見は油層微生物を用いた枯渇油田再生化技術の実現に必要な不可欠な情報である。

これまでに我々は、原油分解メタン生成反応の中間代謝産物として最も重要な酢酸に着目して、枯渇油田における酢酸代謝経路とその関与微生物の特定を行った。その研究においては、国内最大の枯渇油田である八橋油田を対象に、世界に先駆けて高温・高圧培養実験を実施し、地球化学的手法による微生物活性測定と分子生物学的手法による微生物群集構造解析を行った。その結果、油層環境で酢酸は酢酸酸化細菌によって水素と CO₂ に酸化された後、水素酸化性メタン生成菌によってメタンへと変換されることを明らかにした(Mayumi et al., Environ. Microbiol. 2011)。

さらに、枯渇油田は排出 CO₂ の削減を目的とした CO₂ 地中貯留(CCS)の有力サイトであること、高圧 CO₂ 条件下では上記のメタン生成経路はよりシンプルな経路へと変化しうる

ことを熱力学的計算で予見できたため、高圧 CO₂ 条件下におけるメタン生成活性およびその生成経路の特定を同じ油層試料を用いて行った。その結果、高圧 CO₂ 条件下では予想通り、メタン生成経路は酢酸が酢酸酸化性メタン生成菌によって直接メタンに変換されるシンプルな経路へと大きく変化し、それ故に酢酸からのメタン生成速度が 2 倍以上に高まることを観察した。以上の結果は、枯渇油田を対象とした CCS 技術の適用により、「排出 CO₂ の削減」と「エネルギー資源の増産」が同時に達成できる可能性を提示している。しかし、当研究では油層環境で酢酸の供給を担う原油分解反応の分解経路や関与微生物についての知見は未だ得られていない。

2. 研究の目的

上記の背景を受けて本研究では、油層環境における原油分解メタン生成メカニズムの解明を目的とした。さらに我々は既に、高圧 CO₂ 条件下では原油分解メタン生成反応も促進されうることを熱力学的計算で予見しており、これを実験的に証明することにも取り組むこととした。

3. 研究の方法

- (1) CCS 環境模擬高温高圧培養実験による原油分解メタン生成反応の促進効果の検証
国内油田 3 カ所(秋田県油田 2 カ所(A 油田、B 油田)、山形県油田 1 カ所(C 油田))の油層から採取した油層水と原油試料を用いて、本研究で新たに構築した静水圧条件で CO₂ ガスが圧入可能な高温高圧培養システムによる微生物培養実験を行い、原油分解メタン生成活性の促進効果を検証した。
- (2) 安定同位体を用いた原油分解メタン生成メカニズムの解明
 - (1)で観察された原油分解メタン生成反応のメカニズムを明らかにするため、

炭素安定同位体トレーサー実験により原油分解の反応経路や関与微生物の特定を試みた。

(3) 資源創成型 CCS 技術の適用条件と最適条件の検討

(2)で明らかになった原油分解メタン生成メカニズムの知見を既存の油層特性データベースと照合して、原油分解ポテンシャルが存在する油層の特性を明らかにした。

4. 研究成果

(1) CCS 環境模擬高温高压培養実験による原油分解メタン生成反応の促進効果の検証

国内油田3ヶ所(A, B, C油田)から採取した原油と油層水を用いて、高温高压条件下での原油分解メタン生成反応の観察と微生物コミュニティの獲得を試みた。培養条件は現場環境と同じ55℃、5MPaを設定し、経時的にメタン濃度や有機酸濃度を測定した。その結果、C油田において培養200日後に原油からのメタン生成を観察した。さらに継代培養を行った結果、繰り返し原油からのメタン生成を観察することに成功し、原油分解メタン生成微生物コミュニティを獲得した。

一方で、CCSを想定した高CO₂濃度条件下の高温高压培養実験を油層試料を用いて行ったが、有意な原油からのメタン生成は観察されなかった。このような高CO₂濃度条件下における原油分解メタン生成反応の阻害効果はpHの低下が主な原因と考えられた。

(2) 安定同位体を用いた原油分解メタン生成メカニズムの解明

炭化水素成分を炭素安定同位体でラベル化した原油を(1)で獲得した原油分解メタン生成微生物コミュニティに添加し、メタン生成を行わせた結果、炭素安定同位体でラベル化されたメタンと二酸化炭素が検出された。そのときのラベル化率は二酸化炭素よりもメタンにおいて顕著であったため、生成し

たメタンは酢酸資化性メタン生成経路によって生成したことが示唆された。

原油からのメタン生成が観察された後の微生物群集構造解析の結果、その古細菌群集構造は酢酸資化性メタン生成古細菌の優占が観察された。また、細菌群集構造については、培養前の油層水に優占した門レベルで新規な未培養細菌が優占しており、本細菌が原油分解に大きく関与している可能性が示唆された。

(3) 資源創成型 CCS 技術の適用条件と最適条件の検討

(2)で得られた原油分解メタン生成メカニズムに関する知見から、既存の油層特性データベースと微生物群集構造を照合した結果、上記の門レベルで新規な未培養細菌の存在が油層環境における原油分解ポテンシャルの有無に大きく関与すると考えられた。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 1 件)

Daisuke Mayumi, Hanako Mochimaru, Hideyuki Tamaki, Kyosuke Yamamoto, Hideyoshi Yoshioka, Yuichiro Suzuki, Yoichi Kamagata, Susumu Sakata. Methane production from coal by a single methanogen. Science. 査読有り vol.354, 2016. 222-225 DOI:10.1126/science.aaf8821

[学会発表](計 2 件)

Daisuke Mayumi, Jan Dolfing, Susumu Sakata, Haruo Maeda, Yoshihiro Miyagawa, Masayuki Ikarashi, Hideyuki Tamaki, Mio Takeuchi, Cindy H. Nakatsu, Yoichi Kamagata. Impact of CO₂

geological storage on the methanogenic activity and pathway in a high-temperature petroleum reservoir.

15th International Symposium on Microbial Ecology. 2014. Coex Conventio Center, Korea

Daisuke Mayumi, Satoshi Tamazawa, Hideyuki Tamaki, Haruo Maeda, Tatsuki Wakayama, Masayuki Ikarashi, Koichi Nishikawa, Hiroshi Oshibe, Yoshikazu Shirai, Yoichi Kamagata, Susumu Sakata. Insight into in situ methanogenic crude oil degradation in an oil reservoir assessed by geochemical and microbiological analyses. 5th International Symposium on Applied Microbiology and Molecular Biology in Oil Systems. 2015. Stavanger, Norway.

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

取得年月日:

国内外の別:

〔その他〕

ホームページ等

<https://unit.aist.go.jp/georesenv/geomicrob/>

6 . 研究組織

(1)研究代表者

眞弓 大介 (Daisuke Mayumi)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・地圏資源環境研究部門・研究員

研究者番号: 30549861