米焼酎蒸留廃液の生物処理

鈴木 修*・秋田 修・家藤治幸・下飯 仁・飯村 稔
〈国税庁醸造研究所・*(株)TDE〉

平成7年6月7日受理

Treatment of Waste Water Discharged from Rice *Shochu* Distillery with Yeast and Activated Sludge

Osamu SUZUKI, Osamu AKITA, Haruyuki IEFUJI, Hitoshi SHIMOI and Yuzuru IIMURA
(National Research Institute of Brewing, 8511-14, Misonou, Saijo-cho,
Higashihiroshima-shi 739, *Toho Development Engineering
Co., 1443, Nakajuku, Annaka-shi, Gunma 379-01, Japan)

A treatment process of waste water discharged from rice *shochu* distillery with yeasts and activated sludges was developed.

The solid-liquid separation of the distillery waste water was carried out effectively by adding a filtration aid and *Geotrichum* M111 cells, which showed the ability of accelerating the aggregation of insoluble solid in the waste water. The dehydration test of aggregated waste water was made using a belt press-type dehydrator, and the best filtration rate of 33 kg/m²·hr was obtained. The separated filtrate was treated with the waste-treating yeast strain, *Hansenula anomala* J-45-0 and 70% of BOD was removed. In addition, to remove the solid, the filtrate was subjected to the yeast-lytic bacteria, *Rarobacter faecitabidus*, which have lytic-ability against the strain J-45-0. Through this treatment, about 40% of solid was removed from yeast treated water. The waste water treated with *Rarobacter faecitabidus* was diluted to ca. 5~10 times with water and subjected to the activated sludge treatment. The concentration of BOD in the treated waste water was decreased to be less than 30 ppm at the condition of a volumetric BOD loading rate of 0.4~1.0 kg/m³·d. As the result, the waste water discharged from rice *shochu* distillery was clarified by the continuous process of biological treatments.

Key words : 焼酎蒸留廃液・固液分離・排水処理・酵母・活性汚泥

緒 言

焼酎蒸留廃液は、高濃度の BOD に加え、多量の固形分を含むため、粘度が高いことから、高度処理が困難である。そのため、粘性の原因である多量に含まれる固形分を分離除去することが重要と考えられる。固形分を取り除いた蒸留廃液は、BOD が数万 ppm と高濃度であるが、窒素、リンの含有バランスが良く、生物的に分解容易な廃水と考えられる。

著者他は、先に土壤中より植物性セルロースに対し強い凝集活性を持つ酵母の一種 *Geotrichum* M 111 株を分離し、この M 111 株を用いて甘藷焼酎及び麦焼酎蒸留廃液中の固形分を凝集させ、簡易な脱水機を用いることによる固液分離方法を開発した。更に、固形分の除か

れた脱水濾液について、著者他が食品工業廃水の処理法として開発実用化した酵母法を用いて浄化処理を行い、それらの結果を報告した¹⁻⁶⁾。そこで、今回は米焼酎蒸留廃液について、M 111 株による固液分離を行った。米焼酎蒸留廃液は甘藷焼酎蒸留廃液に比べ繊維質が少ないため、セルロース系の助剤を添加することにより凝集の最適条件を設定し、ベルトプレス式脱水機⁶⁾を用いることによって効率的な固液分離を行うことができた。更に、固形分を除去した蒸留廃液について、酵母及び活性汚泥を用いて浄化処理を試み、最終的に河川放流可能な BOD 30 ppm 未満の処理水質が得られた。以下に、これらについて報告する。

実験方法

1. 蒸留廃液

焼酎製造場より排出された米製焼酎減圧蒸留廃液（以下、蒸留廃液）を使用した。

2. 凝集方法

蒸留廃液にセルロース系濾過助剤（KC フロック，武田薬品工業（株））を1～2% 添加し，あらかじめ，YPD 培地（酵母エキス 1%，ペプトン 2%，グルコース 2%）で，30℃，3 日間ロータリー振とう器で培養した M 111 株を，最終菌濃度が 1×10^7 cells/ml から 3×10^7 cells/ml となるように添加混合して，固形分を凝集させた。

3. 固液分離操作

ベルトプレス式の脱水機（ツインクロス脱水機，（株）TDE）を用いて固液分離を行った。また，濾過助剤や M 111 株の無添加試料も同様に固液分離し，濾過助剤及び M 111 株の効果を比較した。脱水機による固液分離の際に，排出される脱水濾液を採取し，以後の酵母及び活性汚泥による浄化処理試験に使用した。

4. 酵母による浄化処理方法

酵母処理槽として，有効 1 l のジャーファーメンターを用い，あらかじめ YPD 培地で培養した酵母 *Hansenula anomala* J-45-O 株を 2×10^7 cells/ml となるように接種し，以下の処理条件で試験を行った。pH 4.8（pH コントローラーを用い，5% 硫酸を添加して制御した），温度 35℃，通気 1～2 vvm，搅拌 600 rpm，滞留時間 24 時間，BOD 容積負荷は 20, 30, 40 kg/m³・d となるように，廃液を希釈して使用した。2 日間馴養後，ローラポンプを用いて 1 日に廃水 1 l を連続的に酵母槽に送液

した。酵母で処理された廃液はオーバーフロー孔より排出され，酵母を溶解する目的で設置した消化槽へ流入するように連結した。

5. 酵母溶解処理方法

酵母槽の次に有効 1 l のジャーファーメンターを連結し，酵母を溶解するための消化槽を設置した。酵母槽からの流入水が 1 l に達した時点で，あらかじめ TYMC 培地（トリプトン 0.5%，酵母エキス 0.3%，麦芽エキス 0.3%，リン酸二カリウム 0.58%，リン酸アンモニウム 0.115%，硫酸マグネシウム 0.0264%，カタラーゼ 0.012%）で 30℃，30 時間振とう培養した酵母溶解菌 *Rarobacter faecitabidus* の培養液を 50 ml 接種し，以下の処理条件で行った。温度 40℃，通気 1 vvm，搅拌 500 rpm，滞留時間 24 時間の連続式とした。消化槽で処理された廃水は，オーバーフロー孔より排出させた。

6. 活性汚泥による処理方法

有効 3 l の堅型曝気槽に有効 1.5 l の沈降槽を連結し，使用した。活性汚泥槽への BOD 容積負荷は 0.4～1.2 kg/m³・d の範囲で，段階的に負荷を上げて適性の負荷条件を調べた。消化槽より排出された処理液を前述の負荷条件になるように取り，水道水で希釈し，全量 3 l として活性汚泥槽に連続的に送液した。また，沈降槽からの汚泥の返送にはエアリフトを利用して，曝気槽に戻し浄化処理試験を行った。以上の浄化処理試験の概略を Fig. 1 に示した。

7. 分析方法

廃液及び処理液の分析は以下の方法で行った。COD は JIS K 0102，BOD は BOD テスター（タイテック

Fig. 1 Flow chart of treatment process for waste water of rice shochu distillery.

Table 1 Characteristics of rice *shochu* distillery waste water.

pH	4.2
COD	48,000 (ppm) (36,000)
BOD	73,500 (ppm) (56,000)
Total-C	53,200 (ppm) (35,200)
Total-N	7,280 (ppm) (4,940)
Total-P	780 (ppm) (690)
Total-sugar	27,150 (ppm) (17,100)
Reducing sugar	— (2,640)
Total solid	39,300 (ppm)
Viscosity	46.5 (mpa/s)

(), Supernatant of the waste water by centrifugation. Analysis: COD; JIS K 0102, BOD; BOD tester Taiyo scientific, Total-C; TOC 500 shimadzu corporation, Total-N; Kjeldahl method, Total-P; Allen method, Total-sugar; Phenol-H₂SO₄ method, Reducing sugar; Somogyi-Nelson method, Viscosity; Viscometer Shibaura systems.

(株)), TOC は TOC 500 ((株) 島津製作所), 窒素はマイクロケルダール法, リンはアレン法, 全糖はフェノール硫酸法, 還元糖はソモギーネルソン法, 固形分は遠心沈澱 (1,000×g, 5 分) の乾物重量より測定した。酵母菌数は血球計を使用した。粘度は回転式粘度計を使用した。活性汚泥による浄化処理試験の分析は JIS K 0102 及び下水試験方法に準じて行った⁷⁾。D.O. は D.O. メーター (セントラル科学 (株)) を用いて測定した。

実験結果及び考察

1. 蒸留廃液の性状

供試蒸留廃液の分析値を Table 1 に示した。米焼酎蒸留廃液は、高濃度の BOD と多量の固形分を含み、粘度も高いことから浄化処理が難しいとされる。しかし、固形分を除いた遠心上澄液の分析値では、BOD に対する窒素、リンの含有バランスが整っており、微生物等による浄化処理に適すると考えられる。

2. 蒸留廃液の固液分離

蒸留廃液に M 111 株を添加して、原料に由来する蒸留廃液中の繊維質固形分を凝集させ、ベルトプレス式脱水機を用いて脱水を行った結果を Table 2 に示した。また、濾過助剤の添加効果についても検討を加えた。M 111 株の添加菌体量を $1 \times 10^7 \sim 3 \times 10^7$ cells/ml で行った

ところ、 1×10^7 cells/ml では濾過不能であったが、 2×10^7 cells/ml と 3×10^7 cells/ml で行ったところ濾過性向上が見られた。両者の濾過速度に大きな差が見られなかったため、以後の実験では最少添加菌体量を 2×10^7 cells/ml とした。

次に、セルロース系濾過助剤を 1~2% 添加して効果を調べた結果、1% の添加では効果は小さかったが、2% の添加では、固形分乾物重量で 33 kg/m·hr と良好な濾過速度が得られた。また、濾過不能であった 1×10^7 cells/ml の菌体添加量でも、濾過助剤を 2% 添加することによって 23 kg/m·hr の濾過速度を示し、助剤の使用が固液分離に及ぼす効果は大きいと思われる。脱水テストによって得られた固形分は 70% 程度の水分を含み、Fig. 2 に示すような性状であった。一方、脱水によって脱水機より排出される脱水濾液の性状を Table 3 に示した。BOD は 35% 程度の減少、固形分は約 50% 減少が見られた。また、濾液中に残存する固形分は、顕微鏡観察から、大半が焼酎酵母と思われる。この脱水濾液を以下の、酵母及び活性汚泥による浄化処理試験に使用した。

3. 酵母による脱水濾液の浄化処理試験

蒸留廃液中の固形分を脱水機を用いて固液分離した際に排出された脱水濾液について、吉沢・鈴木^{8,9)}が先に、食品工業廃水の処理法として開発し実用化した酵母による浄化処理試験を行った。処理試験に使用した酵母は、*Hansenula anomala* J-45-O 株を使用した。酵母槽の

Fig. 2 Dehydration of rice *shochu* distillery waste water by dehydrator.**Table 2** Dehydration of rice *shochu* distillery waste water by a belt press-type dehydrator.

The strain M111 (cells/ml)	2×10^7	3×10^7	2×10^7	2×10^7	1×10^7
Filtration aid (%)	—	—	1	2	2
Cake moisture (%)	71.7	73.5	68.5	72.8	67.0
Filtration rate (Dry-kg/m·hr)	11.2	13.4	14.8	33.0	23.0

Table 3 Characteristics of filtrate of rice *shochu* distillery wastewater separated by dehydrator.

pH	4.1	
COD	39,000 (ppm)	(31,000)
BOD	48,000 (ppm)	(40,000)
Total-C	47,600 (ppm)	(31,400)
Total-N	6,080 (ppm)	(4,160)
Total-P	680 (ppm)	(590)
Total-sugar	17,300 (ppm)	(6,800)
Reducing sugar		(2,450)
Total solid	22,000 (ppm)	
Viscosity	5.5 (mpa/s)	

(), Supernatant of the waste water by centrifugation. Analysis: COD; JIS K 0102, BOD; BOD tester Taiyoscientific, Total-C; TOC 500 shimadzu corporation, Total-N; Kjeldahl method, Total-P; Allen method, Total-sugar; Phenol-H₂SO₄ method, Reducing sugar; Somogyi-Nelson method, Viscosity; Viscometer Shibaura systems.

Fig. 3 Changes of effluent BOD in yeast treatment tank and digesting treatment tank.

Conditions: Yeast treatment tank; 1l jar fermenter, pH; 4.8, temperature; 35°C, aeration; 1~2 vvm, agitation; 600rpm, hydraulic retention time; 24 hrs, digesting treatment tank; 1l jar fermenter, temperature; 40°C, aeration; 1vvm, agitation; 500 rpm, hydraulic retention time; 24 hrs. BOD loading is against the yeast treatment tank.

●, yeast treated waste water. ○, digestion treated waste water.

BOD 容積負荷は試験開始時 20 kg/m³·d とし、その後、30, 40 kg/m³·d となるよう段階的に負荷を上げて、処理能力を検討した。その結果 Fig. 3 に示すように、BOD 除去率は負荷が 20 kg/m³·d の時、63% を示し、30 kg/m³·d では 71%, 40 kg/m³·d では 75% となり、負荷を変動させても、浄化処理には大きな影響が見られないことがわかった。

Fig. 4 Changes of suspended solid in yeast treatment tank and digesting treatment tank.

Conditions: yeast treatment tank; 1l jar fermenter, pH; 4.8, temperature; 35°C, aeration; 1~2 vvm, agitation; 600 rpm, hydraulic retention time; 24 hrs, digesting treatment tank; 1l jar fermenter, temperature; 40°C, aeration; 1vvm, agitation; 500 rpm, hydraulic retention time; 24 hrs. BOD loading is against the yeast treatment tank.

●, yeast treated waste water. ○, digestion treated waste water.

4. 酵母溶解菌による処理試験

脱水濾液を酵母を用いて浄化することで濾液中の BOD を減少させることはできたが、その結果、処理水中の固形分が BOD 容積負荷の上昇に伴い 1~3% に増加していた (Fig. 4)。これらの固形分は顕微鏡観察から大半が増殖した酵母菌体と醪に由来する焼酎酵母であった。そこで酵母処理の次に連結する活性汚泥への負荷を軽減する目的と、沈降槽での活性汚泥の沈降分離が困難となる危険性を回避する目的で、酵母槽の次に消化槽を設け、酵母処理水中に残存する酵母菌体の消化溶解を試みた。著者他^{10~12)}は既に酵母を溶解する細菌である *Rarobacter faecitabidus* を実際の処理場の酵母処理槽に連結する活性汚泥槽から分離している。この酵母溶解菌の培養液を消化槽に接種し、連続的に酵母処理液の消化溶解試験を行い、試験期間中の固形分の経日変化を Fig. 4 に示した。酵母を用いた浄化処理によって、増加した固形分を、酵母溶解菌を用いて消化処理することで、40% 程度低減することができた。酵母槽での BOD 容積負荷の上昇に伴い、酵母処理水中の固形分も増加したが、消化槽での固形分の減少率には大きな影響は見られなかった。また、溶解されずに残存している固形分は顕微鏡観察の結果から、大半が醪由来の焼酎酵母であると見られた。消化処理することで減少した固形分は、酵母処理過程で増加した J-45-O 株の菌体量にほぼ匹敵しており、この結果は *Rarobacter faecitabidus* が酵母の死菌体より生菌体に対してはるかに強い溶菌活性を示したという知見とも一致していた。

Table 4 The removed BOD and dissolution of solid by digesting treatment.

BOD loading	20(kg/m ³ ·d)	30(kg/m ³ ·d)	40(kg/m ³ ·d)
BOD removed (%)	75 (92)	77 (91)	83 (90)
Solids removed (%)	36	42	41

(), Supernatant of centrifugation.

一方, Fig. 3 に示したように, 消化処理槽での BOD の除去効果は, 酵母槽での BOD 容積負荷 20 kg/m³·d の処理液を消化槽で処理した場合 75% の除去率となり, 30 kg/m³·d では 77%, 40 kg/m³·d では 83% の除去率が得られた。また, 固形分を除いた遠心上澄液の BOD 除去率は, いずれの BOD 容積負荷でも 90% 以上であった。結果は Table 4 に示した。

酵母溶解菌は一般に調整槽や活性汚泥槽など, 酵母の生菌体が生存しているところに棲息しており, それらの槽で酵母の溶菌が期待できるため, 消化工程は必ずしも必要ではない。今回の試験結果から, 酵母槽の BOD 負荷が 20 kg/m³·d の処理では, 消化槽での固形分の可溶化は進行したが, BOD の除去率に大きな向上は見られなかった。今回の結果から消化工程は酵母槽の BOD 負荷が 30 kg/m³·d のように高負荷条件の際に, より有効な手段になると考えられる。

5. 活性汚泥を用いた浄化処理試験

脱水濾液を酵母及び酵母溶解菌で処理することにより, 濾液中の BOD を大幅に軽減することができた。

そこで, 河川放流可能な水質にまで浄化するため, 活性汚泥を用いて処理試験を行った。実際の焼酎製造場では, 蒸留廃液のほかに, 蒸留廃液の 5~10 倍量に相当する廃水(間接冷却水などを含む)が排出されている場合が多い。したがって, これらの実際の水量バランスを想定して, 消化処理水を水道水で 5~10 倍に希釈し, 全量を 3 l として活性汚泥処理試験用の原水とした。活性汚泥槽への BOD 容積負荷は 0.4 から 1.2 kg/m³·d とし, 段階的に上げながら試験を行った。各容積負荷での処理水の BOD 平均値と汚泥の沈降性を Table 5 にまとめた。これらの処理結果から, BOD 容積負荷 0.4 から

Table 5 Effect of treatment by activated sludge.

BOD loading (kg/m ³ ·d)	Effluent BOD(ppm)	Sedimentation efficiency(SVI)
0.4	16	80~100
0.6	24	70~80
0.8	27	70~80
1.0	26	80~100
1.2	67	80~100

Effluent BODppm, average value.

SVI (sludge volume index)=SV 30(v/v%)×10,000/suspended solid (mg/l)

1.0 kg/m³·d の負荷条件では, BOD が 30 ppm 未満の処理水が得られ, 活性汚泥の沈降性も良好であった。

BOD 容積負荷 1.2 kg/m³·d では処理水の BOD が 50~90 ppm まで上昇し, 処理効果が低下した。しかし, SVI 値で示されるように汚泥の沈降性は変わらず良好であった。また, 須藤・稲森¹³⁾が述べているように, 生物相は試験期間通して, 固着性繊毛虫の *Voriticella* や *Epistylis* が優先種と見られ, 他に *Philodina* などの後生動物が観察され, 良好な生物相を形成していた。活性汚泥の処理条件として, BOD 容積負荷が最大 1.0 kg/m³·d までは, 河川放流可能な処理水質が得られると思われる。

要 約

米焼酎蒸留廃液の固液分離及び脱水濾液の酵母及び活性汚泥による総合浄化処理法について検討し, 以下の結果が得られた。

(1) 米焼酎蒸留廃液に *Geotrichum*. sp M 111 株を 2×10^7 cells/ml とセルロース系濾過助剤を 2% 添加し, 廃液中の固形分を凝集させ, ベルトプレス式脱水機で固液分離を行ったところ, 33 kg/m³·hr の濾過速度が得られた。

(2) 脱水の際, 排出される脱水濾液について, 酵母を用いて浄化処理試験を行った。酵母槽の BOD 容積負荷が 20~40 kg/m³·d の範囲で連続処理試験を行った結果, 約 70% の BOD を除去できた。

(3) 酵母槽の後処理に設置する活性汚泥への負荷を更に軽減する目的と, 酵母処理の際, 増加した酵母を消化溶解するために, 酵母溶解菌を用いて消化処理を試みた。その結果, 酵母処理中の固形分を約 40% 消化溶解することができ, BOD の除去率も約 80% に向上した。

(4) 酵母及び酵母溶解菌で浄化処理した脱水濾液を水で 5~10 倍に希釈し, 活性汚泥による処理を行った。BOD 容積負荷が 0.4~1.2 kg/m³·d の範囲で連続試験を行った結果, 0.4~1.0 kg/m³·d の負荷条件で, BOD 30 ppm 未満の河川放流可能な水質が得られ, 汚泥の沈降性も良好であった。

文 献

- 鈴木 修, 佐藤俊一, 家藤治幸, 下飯 仁, 蓼沼 誠, 吉沢 淑: 醸協, 86 (2), 137-141 (1991)

- 2) 家藤治幸, 城至純治, 飯村 稔, 小幡孝之: 農化, 68, 33-40 (1994)
 - 3) 高峯和則, 瀬戸口真治, 間世田春作, 浜崎幸男, 武宮重人, 小幡孝之: 醸協, 89 (4), 315-320 (1994)
 - 4) 鈴木 修, 下飯 仁, 家藤治幸, 飯村 稔, 小幡孝之: 醸協, 89 (4), 321-323 (1994)
 - 5) 鈴木 修, 秋田 修, 小幡孝之: 日本醸造学会平成6年度講演要旨集, p.16 (1994)
 - 6) 井出哲夫編著: 水処理工学, p.186, 技報堂出版 (1977)
 - 7) 日本下水道協会技術部会編: 下水試験方法, (1974)
 - 8) 吉沢 淑: 農化, 55, 705-711 (1981)
 - 9) 吉沢 淑, 鈴木 修: 用水と廃水, 28(10), 1016-1023 (1986)
 - 10) 蓮尾徹夫, 山本奈美, 斎藤和夫, 蓼沼 誠: 醸協, 79 (7), 510-516 (1984)
 - 11) 山本奈美, 蓮尾徹夫, 寺内敬博, 斎藤和夫, 蓼沼 誠: 醸協, 79 (11), 828-833 (1984)
 - 12) N. YAMAMOTO, S. SATO, K. SAITO, T. HASUO, M. TADENUMA, K. SUZUKI, J. TAMAOKA, K. KOMAGATA: *Int. J. Syst. Bacteriol.*, 38, 7-11 (1988)
 - 13) 須藤隆一, 稲森悠平著: 生物相からみた処理機能の診断, p.132, 産業用水調査会 (1983)
-