「日本食品工学会誌」, Vol. 6, No. 2, pp. 151 - 160, Jun. 2005

◇◇◇ 技術論文 ◇◇◇

包装餅製造工場洗米等排水の再生・リサイクルに適した限外濾過膜の選定

ラフマン・アイラ[1]，城　斗志夫[1]，伊東　章[1]，片岡龍磨[2]，大西真人[3]，渡辺敦夫[1†]

[1]新潟大学大学院自然科学研究科，[2]たいまつ食品株式会社，[3]日立プラント建設株式会社

Selection of Ultrafiltration (UF) Membrane Modules for Clarification of Rice Washing Drainage from Packed Rice Cake Manufacturing Plant

Aila RAHAMAN[1], Toshio JYOU[1], Akira ITOU[1], Tatsuma KATAOKA[2], Masato OONISHI[3], Atsuo WATANABE[1†]

[1]*Graduate School of Science and Technology, Niigata University, Ikarasi, Niigata 950-2181, Japan*
[2]*Taimatsu Foods Corporation, 1345 Muramatsu-machi, Nakakanbara-gun, Niigata 959-1794, Japan*
[3]*Hitachi Plant Engineering & Construction Co., Ltd , 537 Kami-hongo, Matsudo, Chiba, 271-0064, Japan*

In a packed rice cake manufacturing plant, about 5 m^3 fresh water to one ton of raw rice is used in each process of the rice washing and soaking process. The amount of water used in both processes accounted for about 60% of that in the whole plant regardless of season. The purpose of this study is to clarify the rice washing drainage by membrane separation technique and to reuse the clarified water in the rice washing and soaking processes in order to decrease the costs of fresh water and wastewater treatment without spoiling product quality, especially storage stability related to microorganisms. Because the results of the preliminary experiments suggested that UF membrane is suitable for clarification of rice washing drainage, three types of hollow fiber UF membrane modules were tested , nominal molecular weight cut off, 30kDa, 100kDa, and 150kDa. The analysis of drainage from the rice washing and soaking processes revealed that the first and second rice washing drainage contained a large quantity of solutes and suspended substances, and permeation flux were very low. Therefore, we decided that the first and second drainage should be treated by active sludge method, and the other drainage should be clarified by UF membrane for recycling. A mixture of third to fifth rice washing drainage and rice soaking drainage was used for clarification and recycling experiments. The membrane modules for clarification of rice washing drainage was evaluated from the viewpoint of permeation flux, rejection rate of solutes, which were protein as high molecular weight substance and fatty acid as low molecular weight substance, and flux recovery by membrane washing. It was concluded the membrane module of 150 k was the most suitable for the clarification and recycling of rice washing drainage.

Key words: rice washing drainage, ultrafiltration, clarification of waste water, recycle of water

1. 緒　　言

新潟県は，米菓・包装米飯・酒・包装餅等，米を原料とする加工工場が多い．これら工場では，洗米および浸漬工程で用水使用量が多く，用水費用と活性汚泥法による排水処理費用が生産コストの引き上げの要因[1]となっている．洗米等排水（洗米排水と浸漬排水の両者を併せて洗米等排水とする．洗米等用水についても同様の意味で用いる）中には，ヌカ，デンプン，水溶性タンパク，遊離脂肪酸，糖等が含まれBOD値が高い[2]．とくに餅の消費は正月に集中するため，気温が低く微生物活性が低い時期に大量の排水を処理する必要が生じ，相対的に大型の排水処理設備が必要となる．

技術の進展とともに，従来の生産工程を見直す必要があり，問題解決の全体像を描く中で，問題点を1つ1つ解決しトータルとしての解決を図っていく必要があると考える．

（受付 2005年1月17日，受理 2005年3月14日）

1 〒959-2181　新潟市五十嵐2の町8050
2 〒959-1794　新潟県中蒲原郡村松1345
3 〒271-0064　千葉県松戸市上本郷537
† Fax: 025-262-7958, E-mail: watanabe@gs.niigata-u.ac.jp

洗米は，洗米用水と米とを混合撹拌し，排水と米とを分離する工程を数回繰り返す．本研究では，この工程を順次，1次，2次，洗米工程とよぶことにする．さらに，浸漬工程があり，均一な蒸米を行うため米粒中に十分水を浸透させる．ここでは，洗米工程と浸漬工程を合わせて洗米等工程とする．

洗米等排水に含まれるデンプン・微生物等の懸濁成分と溶解している不要成分を膜分離技術により分離・再生し，膜透過液を洗米等用水としてリサイクルすることにより用水使用量を削減することを考えた．ここでは懸濁成分と溶解成分の両者を併せて溶質等成分とする．

包装餅製造工場を対象に，以下に述べる洗米等排水の総合的処理・再利用システムの構築を想定するが，第1段階として，本報告では，餅の保蔵安定性および官能評価による品質に影響を与えることなく，洗米等用水の使用量を削減することを目的に洗米等排水の再生およびリサイクル技術の確立のための限外濾過（UF）膜選定に関する研究を行った．

なお，包装餅工場を研究対象としたのは，上記の冬場における排水処理問題とともに，分離回収されるモチ米デンプンの方が，うるち米デンプンより付加価値が高いと考えたためである．

そこで，以下の考えに基づき研究を進めることにした．
①リサイクル水には，餅の保蔵安定性の面から微生物を含まないことが望ましい．また，再生水は一定時間貯水し，使用することになる．したがって，洗米等排水中に溶出されてくる米表面に付着していた微生物を，分離膜を使用し再生水から分離除去しておくことが必要であると考える．
②工場により異なるが，洗米工程には，1次～5次洗米工程等，さらに浸漬工程があり，洗米次数が高くなるにしたがい排水に含まれる溶質等成分は少なくなる．溶質等成分が多いと膜にファウリングが生じ透過流束が低下すると考えられる．そこで，排水再生のコストを低減するため汚濁の少ない排水から再生・リサイクルを進める．また，排水中に含まれる溶質等成分は濃縮されるので回収・再利用することが必要であるが，今後，コストとのバランスを勘案しながら総合的に利用方法を考える．
③膜処理する洗米等排水の80%を透過液として再生し，リサイクルする．
④不足する洗米等用水は新しい用水で補う．
⑤米の吸水量が多いため用水中の溶質等成分が品質に影響を与える可能性が高いと考えられる1次洗米工程と浸漬工程にはできるだけ新しい用水を使用する．
⑥透過液として再生された用水は数回リサイクルすることを基本とし，今後，排水再生コストと餅の品質とのバランスの中で検討を進める．

洗米を行うのは，米粒に付着したヌカ成分を除去すると同時に米中の不要成分を除去することであると考えられる．しかし，洗米を行うとどの成分が洗米等排水中に溶出するかについての研究[2]はあるが，洗米により除去される成分と餅の製品品質に関する研究はみあたらない．

最近の無洗米の普及をみると，炊飯後すぐに消費される米飯は米粒に付着したヌカ成分を除去すれば米飯の風味には大きな影響を与えないと考えられているようである[3]．すなわち，保蔵安定性に影響を与えるとされる微生物や，その他の成分の除去については考慮されていない．

しかし，長期間のシェルフライフが要求される包装餅の洗米等工程では，米からヌカを除去すると同時に，細菌，タンパク質，遊離脂肪酸を除去すること，その後の浸漬工程では，蒸米した時に澱粉の糊化が十分進むように水分を米粒中に均一に浸透させること，さらに浸漬時間が長くなる場合は細菌の増殖を防ぐことが必要であると考えられる．

本来であれば，洗米により除去すべき成分と品質の相関を確認したのち，水の再生・リサイクルの研究を推進するのが望ましいと考えるが，この研究は極めて複雑であり，今後に残された課題とし，以下に述べる仮定をおいて研究を進めても問題はないものと考える．

すなわち，ここでは餅の膨化性に影響を与えるとされる高分子量成分であるタンパク質[4]と，古米臭の発生に関係[5]し酸化されると風味の低下に影響するとされる低分子量成分である遊離脂肪酸の阻止性能を指標とし，再生水をリサイクル使用しても餅の品質に影響を与えないようにこれら成分を分離することを考えた．

上記の分離を行う膜技術にはUFおよびナノ濾過(NF)が考えられる．NFよりUFの方が低圧で透過流束を高く保持できると考えられること，NF膜モジュールよりUF膜モジュールの方が耐薬品性・耐熱性の高いものが開発されているためメンテナンスが容易であること，UFでも低分子量成分である脂肪酸はかなり分離できることからUF膜を使用することにした．

UF膜の材質には種々のものが開発されているが，包装餅の製造では微生物汚染を極力避けることが望ましいので，膜モジュールの洗浄・殺菌性を考慮し，耐薬品性・耐熱性の高いポリエーテルスルフォン系の膜モジュールを使用することにした．

また，単位体積あたりの膜面積が大きい膜モジュールが装置コストおよび運転コストの点から望ましい．この点から，スパイラル膜モジュールと中空糸膜モジュールが考えられるが，懸濁成分を含む排水には内圧型の中空糸膜モジュールが取り扱いやすさおよび洗浄性の面からも好ましいと考えられること，さらに懸濁成分がモジュール端部に流路閉塞を起こすことのないように中空糸の内径が比較的大きいこと等を考慮し本実験で使用し

た中空糸UF膜モジュールを利用することにした．

洗米等排水をUF処理することによりその阻止性能と透過流束，および膜の洗浄回復性の関係から再生・リサイクルに適したUF膜の選定を行った結果について報告する．

2. 実験方法

2.1 餅工場の排水排出状況調査

包装餅製造工場の用水使用状況を把握するため，県内餅工場を対象に2002年度の繁忙期（9月～12月）と2003年の閑散期（3月～7月）に調査を行った．

調査は，洗米工程，浸漬工程，蒸米工程，バイオクリーンルーム，さらにその他（生活用水等）の用途に分けて水道配管を分岐し，各々に流量計を設置し測定した．

2.2 実験材料

2002年収穫の新潟産米，コガネモチを玄米の状態で15°Cの冷蔵庫に保存し，使用に応じて60 kgずつ精米し，使用した．

2.3 洗米・浸漬条件と供試液の前処理

本研究では，モデル洗米条件として，餅米1 kgに対して洗米用水として水道水を1 Lずつ使用し，下記の方法で洗米し，この工程を5回繰り返した後，2 Lの用水に2時間浸漬[6]することを基本とし，実験に供する排水の必要量に応じて，米の量を増やすことで対応した．

洗米方法を一定にするため，プラスチック容器に米の使用量を秤取し，洗米用水を加え，左右へ1回ずつ撹拌し，これを10回繰り返した．その後，ザルを用いて米と洗米水を分離し，洗米排水を得た．

洗米等排水をUF処理する前にナイロン布で粒径の大きな懸濁成分を除去し，膜の端部に流路閉塞を起こさないようにし，実験に供した．

2.4 洗米等排水の成分分析

2.4.1 水溶性タンパク質の測定

Lowry法[7]を用いた．吸光度の測定には，紫外可視分光光度計UV-160A(島津製作所製)を用いた．

2.4.2 遊離脂肪酸の測定

Ayers，岩山，Duncombeらによって研究，開発された方法を改良した大坪ら[8]の分析法を用いた．

試料液中に含まれる遊離脂肪酸を，ジエチルエーテルを用いて抽出・濃縮したのちにクロロホルムに溶解し脂肪酸を銅塩として440 nmで比色定量した．試料は遊離脂肪酸の濃度に応じて20～80 mLを用いた．なお，リノール酸を用いて検量線を作成した．

2.4.3 固形分の測定

ビーカーに試料液A [L]をとり，60°Cで乾燥機を用いて24時間乾燥し，これをB [g]とした．

乾固物量［g·L^{-1}］＝（B/A）によって計算した．

2.4.4 粒径分布の測定

ナイロン布で懸濁成分を除去した各洗米等排水を試料とし，レーザー回折式粒度分布測定装置（島津製作所製，SALD-3000）を用い測定した．

2.5 供試液およびUF濾過装置と運転条件

供試液は1次および2次洗米排水の溶質等濃度が高く，予備実験の結果著しく膜透過流束が低下するため，本報告では3～5次洗米排水と浸漬排水を合わせて，ナイロン布で懸濁成分を分離し，膜透過実験に供した．

使用したUF装置をFig. 1に，膜モジュールの仕様をTable 1に示す．ダイセンメンブレン㈱製ポリスルフォン系中空糸UF膜モジュール，分画分子量3万，10万および15万の3種を使用した．

供試液を，温度20°C ± 1°Cにおいて，圧力0.02，0.05，0.1 MPa，膜面線速0.5，0.9，1.1m·s^{-1}の運転条件の範囲でUF処理し，Fig. 1に示したD配管を使

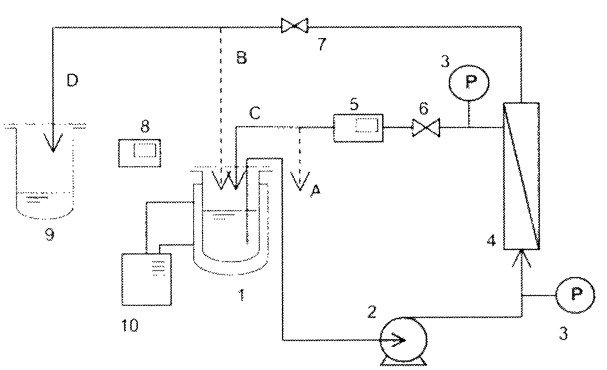


Fig. 1 Apparatus for ultra-filtration of rice washing water. 1: Feed tank, 2: Pump, 3: Pressure gauges, 4: UF membrane module, 5: Flow meter, 6: Valve for filtration pressure setting, 7: Valve for washing operation, 8: Temperature indicator and controller, 9: Pemeate tank, 10: constant temperature bath C and D: Normal operation, A, B and C: Washing operation of membrane module and equipment.

Table 1 Membrane module specifications.

□	30k MWCO□	100k MWCO□	50k MWCO□
Model	FUS-1582	FUS-1071	FUS-0382
Membrane material	Polyethersulfone		
Nominal molecular weight cut-off	30,000	100,000	150,000
Inner diameter of hollow-fiber [mm]	0.8	0.7	0.8
Number of hollow-fibers	380		
Housing [mm]	ϕ48／364		
Membrane area [m^2]	0.25	0.22	0.25
Allowable pH	1～13		
Max. temperature	98℃		

(Manufacture: Daicen Membrane Systems Co., Ltd., Japan)

用し透過タンクに初期原液の80%を回収した．

2.6 阻止率と透過流束の測定

UF処理を行う間，各成分の原液濃度と透過液濃度を測定し，見かけの阻止率を求めた．

透過流束に関しては，UF処理を開始してから，一定時間経過するごとに透過液量を測定し，この間の平均の透過流束を求め，測定の中間時点の透過流束とした．

2.7 UF膜の洗浄方法

2.7.1 水洗浄

UF処理終了後，膜モジュールを装置からはずし，補助配管し，膜装置内に残った滞留液を，水道水を用いて排出させた．排出条件は供給水量15 L·min^{-1}で1分間行った．

その後，膜モジュールを設置し，純水透過流束を測定した．なお，純水の透過流束は，圧力0.1 MPa，線速0.9 m·s^{-1}，温度20°Cで測定した．これを，濾過直後の純水透過流束J_{v1}[L·m^{-2}·h^{-1}]（以下透過流束の単位は同じ）とした．

濾過後の透過流束維持率F_1[%]は

$$F_1=(J_{v1}/J_{v0})\times 100 \quad (1)$$

で求めた．なお，濾過前の純水透過流束をJ_{v0}とする．

さらに，透過液側の洗浄時使用バルブ7を閉め，液が透過しない状態で水洗浄を10分間行った．水の温度50°C，線速1.5 m·s^{-1}とし，A配管を利用し，水を系外に排出させ,洗浄を行った．

この後，純水透過流束を測定し，これを水洗浄後の純水透過流束J_{v2}とし，水洗浄回復率F_w[%]を

$$F_w=(J_{v2}/J_{v0})\times 100 \quad (2)$$

で求めた．

2.7.2 洗剤洗浄

水洗浄した膜モジュールをさらに洗剤を使用し洗浄した．洗剤洗浄回復率F_{d1}が95%になるまで，10 Lの0.5% Ultrasil10（エコラボ社製洗剤）洗浄液を用い，温度は50°C，線速0.5 m·s^{-1}で30分全循環洗浄（透過液はB配管により原料タンクに戻す）を行った．この時の膜間差圧は0.01 MPa以下になるように注意した．

より高温で洗浄すればさらに洗浄効率は向上すると考えるが，本装置では安定して温度を保持できる上限が50°Cであったためこの条件で洗浄を行った．

30分の洗浄後，純水透過流束J_{v3}を測定し，洗剤洗浄回復率F_{d1}[%]を

$$F_{d1}=(J_{v3}/J_{v0})\times 100 \quad (3)$$

で求めた．

なお，洗剤洗浄が1回で回復しない時は，上記の洗浄を繰り返し，洗浄後の透過流束J_{v4}を求め式（3）から2回洗浄における洗剤洗浄回復率F_{d2}を求めた．

2.8 再生水で洗米した炊飯米の品質

洗米水の水質が製品に与える影響を確認するため，以下の方法で洗米した米を炊飯し官能検査を行った．製餅せず，炊飯米で官能による評価を行ったのは，洗米用水の違いがヌカ臭に大きく影響すると考え，炊飯米の方が加工工程が短く品質を識別し易いと考えたためである．

2.8.1 新しい用水のみによる洗米方法（対照区）

新しい洗米等用水のみで洗米・浸漬した米を炊飯し，これを以下の方法で洗米炊飯した米の対照区とした．

2.8.2 UF再生水を使用する方法（廃棄・UF処理区）

初めの洗米は新しい用水のみを用い，10 kgのモチ米を洗米し，各次数別に合計約70 Lの洗米等排水を得た．

UF再生水を使用した1回目の洗米は以下の方法で行った．上記の約70 Lの洗米等排水のうち，1次・2次洗米排水は廃棄し，3次以降の洗米等排水50 Lから，UF透過液40 Lを再生水として回収した．1次洗米用水と浸漬用水には新しい用水30 Lを使用し，UF再生水40 Lを2次～5次洗米用水として使用した．

UF再生水を使用した2回目の洗米は，UF再生水を使用した1回目洗米等工程で排出された3次以降の洗米等排水50 Lを，1回目と同様の方法でUF処理しUF再生水を1回目と同じ利用方法で洗米に使用した．

2.8.3 UF処理せずリサイクル使用する方法（廃棄・UF処理なし区）

リサイクル水を使用した1回目・2回目の洗米において，1次，2次洗米排水を廃棄することは2.8.2に示した用水の使用方法と同じであるが，3次以降の洗米等排水をUF処理しないで洗米水としてリサイクル使用した．

2.8.4 洗米等排水をそのまま使用する方法（処理なし区）

リサイクル水を使用した1回目・2回目の洗米において，1次，2次洗米水を廃棄することなく，すべての洗米等排水を合わせて，何の処理もすることなく洗米等工程にリサイクル使用した．

3. 結果および考察

3.1 餅工場の排水排出状況調査と洗米条件

餅の消費は正月に集中するが，繁忙期として9月～12月までの平均値および閑散期として3月～7月の平均値として用水使用量を調査し，洗米工程と浸漬工程のみのデータを示した．

Table 2には，米1トンあたりの洗米工程および浸漬工程それぞれの用水使用量と工場における全用水使用量に占める割合を示す．両期とも，洗米工程および浸漬工程それぞれでは，米1トンあたり約5 m^{3}の用水

Table 2 Rice washing-water usage in a paked rice-cake manufacturing plant.

	-Busy season- From September through December (2002)		-Off season- Form March through July (2003)	
	Washing process	Soaking process	Washing process	Soaking process
Washing water usage per 1 ton of raw rice	5.4m³/ ton-rice	5.5m³/ ton-rice	5.5m³/ ton-rice	4.8m³/ ton-rice
Percentage in daily total water usage of the whole plant	30.7%	31.6%	31.3%	27.5%

が使用されており，洗米等用水使用量は工場全体の用水使用量の60%近くを占めていることがわかった．

以上を勘案して本研究でのモデル洗米条件を実験方法2.3に示した方法に統一した．すなわち，洗米工程は1 kgの米に対し1次～5次に分け，5 Lの用水を使用したのは実工程と同様であるが，浸漬工程では2 Lの用水を使用した．これは，工場では米を移動する際，米が擦り合い，多くの細粒が発生するのでそれを洗浄する意味と，製造時間帯によっては1昼夜浸漬しておくこともあるので微生物の増殖防止の意味もあり大量の用水が使用されている．本研究では，2時間の浸漬を行うだけであるので2 L程度が妥当であると判断した．

3.2 洗米等排水の性状

洗米次数別の洗米等排水中の溶出等成分の変化をTable 3に示す．

3.2.1 水溶性タンパク質

餅に含まれるタンパク質は，餅の膨化性に影響を与えるとされる以外に，微生物の栄養源となるため保蔵安定性にも関係すると考えられる．そこで，洗米等排水を再生・リサイクルする際，できるだけ除去しておくことが望ましいと考えた．

Table 3に示した通り，各洗米等排水中の水溶性蛋白質濃度は，それぞれ760 mg·L^{-1}，250 mg·L^{-1}，71 mg·L^{-1}，46 mg·L^{-1}，41 mg·L^{-1}，130 mg·L^{-1}であった．

1次，2次洗米排水中の水溶性タンパク質濃度が著しく高く，両者で約70%のタンパク質が溶出し，洗米次数の増加につれて減少した．しかし，3次～5次洗米水では，洗浄次数が増加しても，濃度に大きな変化はみられず，タンパク質の溶出量比率SR(%)は合計11.1%であった．

ここで，溶出量比率SRは以下のように定義した．

$SR\ (\%) = [(C_n \times V_n) \ / \ \{\Sigma\ (C \times V)\}] \times 100$

ここで，C_nはn次洗米等排水濃度[mg·L^{-1}]，Vnはn次洗米等排水量[L]，Cは次数別洗米等排水濃度[mg·L^{-1}]，Vは次数別洗米等排水量[L]を表す．

浸漬排水では溶出濃度は若干増加した．これは，浸漬により水が胚乳に浸透し，米内部の水溶性タンパク質を溶出したためと考えられる．溶出量比率は18.2%であったが，1次，2次洗米排水と比較し3次～5次洗米排水と沈積排水は，はるかに低濃度であることがわかった．

3.2.2 遊離脂肪酸

米に含まれる脂肪は結合脂質[9]と，スフェロゾーム等に含まれる脂質とに分けられるが，酵素の働きにより分解され遊離脂肪酸が生じる．脂質は餅の粘弾性に影響を与える[10–12]．

遊離脂肪酸はデンプンのらせん構造と結合し炊飯時の糊化を妨げると同時に，酸化を受け古米臭の原因になるとされている．餅においては遊離脂肪酸が品質とどのような関わりをもつか，また洗米等排水からどの程度除去しなければならないかについては不明である．しかし，品質に何らかの悪影響を与えると考えられるので，

Table 3 Solute components in the washing and soaking drainage.

	Concentration of water-soluble protein(WSP) [mg/L]	Percentage of WSP amount in each drainage	Concentration of free fatty acid(FFA) [mg/L]	Percentage of FFA amount in each drainage	Concentration of dry solid (DS) [g/L]	Percentage of DS amount in each drainage
1st-washing drainage (1L)	760	53.2%	15.0	36.9%	16.9	61.5%
2nd-washing drainage (1L)	250	17.5%	7.9	19.4%	4.4	16.0%
3rd-washing drainage (1L)	71	5.0%	4.3	10.6%	1.99	7.2%
4th-washing drainage (1L)	46	3.2%	3.4	8.3%	1.25	4.6%
5th-washing drainage (1L)	41	2.9%	3.5	8.6%	1.08	3.9%
Soaking drainage (2L)	130	18.2%	3.3	16.2%	0.94	6.8%
Dissolved amount from raw rice	1428 mg/kg-rice		41.0 mg/kg-rice		27.5 g/kg-rice	

分離膜の阻止性能を評価するための指標として遊離脂肪酸濃度を測定した．

1次，2次洗米排水中の遊離脂肪酸濃度は15.0 mg·L^{-1}，7.9 mg·L^{-1}であり，脂肪酸の溶出量比率は約65%を占める．1次，2次洗米排水中に遊離脂肪酸が多かったのは，餅米中の遊離脂肪酸はモチ米の周りに付着していたヌカの中に存在したためと考えられる．3次以降の溶出量比率は，減少するが10.5%，8.3%，8.5%であり，浸漬水中の溶出量比率は16.1%であった．これら遊離脂肪酸は米粒中に存在していたものが水の浸透により抽出されてきたものと考えられる．

3.2.3　固形分

洗米等排水中の懸濁成分は，ヌカとデンプン粒が中心であると考えられる．

精米工程で米粒の表面に付着したヌカ成分は洗米の初期段階で洗い取られる．ヌカ臭が米粒内部に浸透すると品質に大きな影響を与えると考えられるため，リサイクルする用水から十分除去する必要がある．デンプン粒は洗米工程で米粒同士が擦られ，発生するものであり餅の品質に影響を与えるとは考えられない．

1次，2次洗米排水では16.9 g·L^{-1}，4.4g·L^{-1}と濃度が高く固形分の溶出量比率は61.5%，16.0%であり，合計で約77%を占めている．

3次洗米排水以降は急激に低下し，7.2～3.4%であり，洗浄次数が増加しても，濃度の減少は少なかった．

また，5回洗っても洗米排水中の固形分がなくなることはなかった．その理由は洗米時に米同士が擦り合わせることにより，表面のデンプン粒が徐々に削られ溶出されたためと考えられる．

3.2.4　洗米等排水の粒径分布

洗米排水および浸漬排水の粒径分布は，1次洗米排水がやや大粒径側にあるが，他の排水においてはほぼ同様であり，4次洗米排水に含まれる粒子径分布を代表例としてFig. 2に示す．Table 4に洗米等排水のメディアン径，モード径および平均径を示す．メディアン径は0.95～1.10μm，モード径は0.891μm，平均径は1.04～1.20μmの範囲であり，1次洗米排水を除いて，他の洗米等排水中の粒径分布はほとんど同じであり，細かいデンプン粒が中心として含まれていることがわかる．1次洗米排水の粒径分布は他のものとやや異なるので厳密には正確さに欠けることになるが，他の排水の粒径分布はほぼ同じであること，排水の相対的粒子濃度を比較できれば排水の性質を理解しやすいことから，吸光度と希釈率の関係から相対粒子濃度を求めた．

粒子径は0.4 μm～10μmに分布しており，1μm以下の粒子の数が多い．洗米次数の低い排水の方が急速に透過流束の低下を起こすのは，粒子濃度が高いこと，大粒子と少粒子が混在しお互いが隙間を埋めるようにファウリングを起こすことに起因すると考えられる．

膜の洗浄回復性については，本報3.4.3項でさらに考察する．

体積分率粒径分布についても，Table 4にモード径を示す．1次洗米排水のモード径8.62μm，2次洗米排水は5.80μm，3次洗米排水以降は4.76μmで一定であり，1次・2次洗米水の体積分率での粒径は大きいことがわかった．これは，精米時に米表面に付着するヌカや大きなデンプン粒が洗米初期に洗浄除去されるためであると考えられる．粒径の大きな粒子は体積比率に占めるウエートが大きいが，大きい粒子だけが洗米等排水中に存在するなら，粒子間の空隙は大きくなるので透過流束の低下は大きく起こらないと考えられるが，サブミクロンの微粒子との混在により各粒子がお互いの隙間を埋めるように堆積することにより透過流束の深刻な低下を引き起こしているものと考えられる．

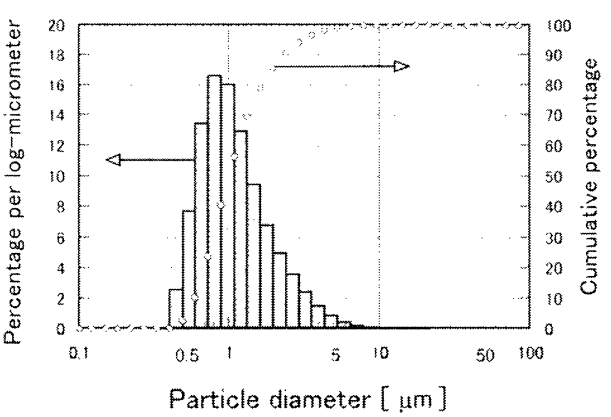


Fig. 2　Particle size distribution in 4th -washing drainage in particle number base.

Table 4　Particle size in the rice washing and soaking drainage.

	Particle number base				Volume base
	Median diameter [μm]	Mode diameter [μm]	Average diameter [μm]	Particle concentration (Relative value)	Mode diameter [μm]
1st-washing drainage	1.063	0.891	1.153	80	8.62
2nd-washing drainage	0.943	0.891	1.037	37	5.80
3rd-washing drainage	0.945	0.891	1.032	17	4.76
4th-washing drainage	0.990	0.891	1.086	12	4.76
5th-washing drainage	1.08	0.891	1.193	7	4.76
Soaking drainage	0.969	0.891	1.060	1	4.76

3.3 UF膜選定のための実験条件の設定

上記の分析結果と実際に洗米次数等別に洗米等排水をUF処理し透過流束を測定するなどの予備実験の結果，以下の条件で濾過特性を確認しUF膜を選定することにした．

3.3.1 使用する洗米等排水

洗米等排水成分分析結果から，1次，2次洗米排水中の水溶性タンパク質，遊離脂肪酸，固形分濃度が高いことがわかった．また，本報告には示さなかったが，予備試験として洗米次数別に排水をUF処理した結果，1次と2次排水の透過流束は他の排水と比較して著しく低いことから，以下のUF膜の選定においては，3次～5次洗米排水および浸漬排水をまとめて処理することにより，洗米等排水の処理に適するUF膜を選定することにした．

また，排水の利用方法の基本として処理する排水の80%を再生しリサイクルすることとした．

3.3.2 使用する膜モジュール

排水には微粒子が含まれているのでファウリングが起こりやすい．そこで膜機能の回復のため，ファウリング層の洗浄性，膜モジュール端部での流路閉塞，耐薬品性と耐熱性を考慮し，ダイセンメンブレン㈱製のポリエーテルスルフォン系中空糸UF膜モジュールを使用することにした．

排水中から分離すべき成分としては，保蔵性を考慮すると微生物があるが，本報告ではタンパク質と脂肪酸を指標とし，UF処理水を洗米等用水としてリサイクルした際，包装餅の品質に悪い影響を与えないように考慮した．しかし，緒言で述べたように洗米等用水の水質と包装餅の品質との関係は明らかになっていない．

そこで，緒言に述べた仮定をおいて研究を進めざるを得ないので，本研究では，分画分子量は3万，10万および15万の3種のUF膜を用いることにした．材質をポリエーテルスルフォン系のものにしたのは洗浄・殺菌性を考慮してのことである．分画性能の選定の意味からは，できるだけ排水中の溶質等成分を分離し再生水の清浄度を高めることが望ましいと考えるが，透過流束との兼ね合いの中で膜の選定を行うことが必要である．この点，結果として15万の膜で分画性能・透過流束ともにほぼ満足な結果を得たので，本研究では，さらに大きな分画分子量の膜を使用する実験を行わなかった．

今後，洗米等排水の水質と包装餅の品質との関係をさらに明らかにすることと平行して膜の分画分子量等について研究を進め，最適化することも必要であると考えるが，現状では適正な条件の中で実用化を考えていくことが必要である．

膜モジュールを含めた膜装置の衛生状態が清浄であればUF処理透過液から微生物が分離されることは当然であるが，本研究に用いた膜装置はサニタリー仕様でない点から微生物に関する検討は行わなかった．

3.4 膜モジュールの選定

3.4.1 透過流束の比較

3～5次洗米排米と浸漬排水を混合して，分画分子量3万，10万，15万の膜でUF処理し，原液量の80%を透過液（再生水）として回収した．Fig. 3に，膜面線速0.9 m·s^{-1}，圧力0.02 MPaの運転条件における透過流束の変化を示す．

3種の膜ともに，UF処理開始初期には透過流束が高く，時間とともに透過流束が減少し，80%の回収率に近づくにしたがいほぼ一定になった．この値を，80%回収時透過流束とよぶことにする．80%回収時透過流束は，15万の膜が約100 L·m^{-2}·h^{-1}，10万の膜が約50 L·m^{-2}·h^{-1}，3万の膜が25 L·m^{-2}·h^{-1}程度であり，15万の膜の透過流束が圧倒的に高かった．

次に，膜面線速を0.5 m·s^{-1}および0.9m·s^{-1}において，3種の膜の透過流束と運転圧力との関係を検討した．膜面線速を0.9m·s^{-1}として，0.02～0.1 MPaにおける80%回収時透過流束の圧力依存性の結果をFig.

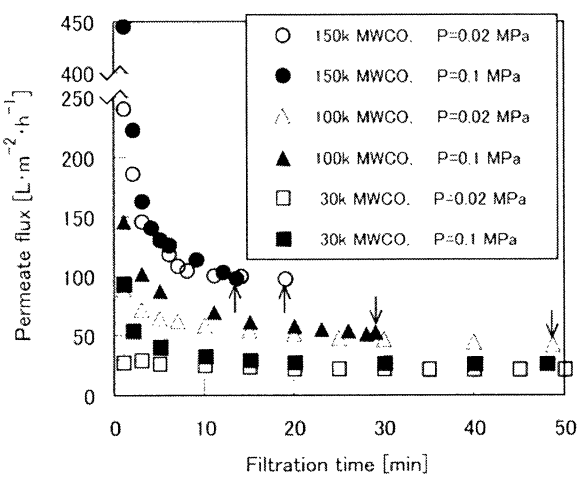


Fig. 3 Permeate flux of UF for rice washing drainage. Feed velocity μ = 0.9 m·s^{-1}. ↓ ↑: Filtration end points.

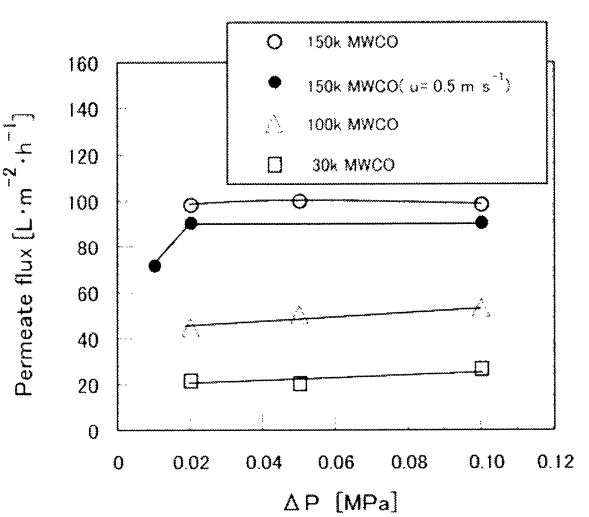


Fig. 4 Effect of applied pressure on terminate flux of UF for rice washing drainage. Feed velocity μ = 0.9m·s^{-1}

4に示した．15万の膜の透過流束が高く10万，3万の順であったが，15万の膜では0.02 MPa以上に圧力を増加させても80%回収時透過流束は増加せず，わずかに低下する傾向があった．これは，0.02 MPaで限界透過流束になり，さらに圧力を高めるとファウリング層が圧密化を起こすものと考えられる．

これに対して，10万と3万の膜の80%回収時の透過流束は，0.02 MPa以上の圧力でやや増加傾向にあったがほとんど変化がなかった．15万の膜面ファウリング層の厚みは，他の膜より厚く圧力により圧密化を起こしやすいものと考えられるが，3種のUF膜に形成されるファウリング層の性質の違いはわずかであり，膜モジュールの選定に大きな影響は与えないので今後の研究課題とした．

実験の精度を確認する意味から，15万の膜を使用し，膜面線速0.5 $m \cdot s^{-1}$に設定し圧力を0.01 MPaから0.1 MPaに変化させ80%回収時の透過流束の圧力依存性を調べた．膜面線速を0.9 $m \cdot s^{-1}$にすると膜モジュール内での圧力損失が大きく，0.02 MPa以下の圧力での運転ができない．また，本研究に使用した装置の特性から膜面線速を0.5 $m \cdot s^{-1}$，圧力0.01 MPaに設定すると安定した運転が行い難い．Fig.4に示したように15万の膜モジュールは圧力依存性を示し，0.02 MPaで限界透過流束になることを確認した．

実際のモジュールでは，流路が長いため膜モジュール内での圧力損失は実験機におけるよりさらに大きいため，膜面線速をよほど低くしないと0.01 MPaの圧力は設定できないので実用上はこの条件を取ることは難しいと考えられる．

上記の結果から圧力は0.02 MPaがよいとの結果を得たので，0.02 MPaの圧力で膜面線速を0.5$m \cdot s^{-1}$，0.9 $m \cdot s^{-1}$および1.1 $m \cdot s^{-1}$とし透過流束と膜面線速の関係を調べた結果をFig. 5に結果を示した．膜面線速の増加によりやや透過流束が上昇するものの0.9 $m \cdot s^{-1}$と1.1 $m \cdot s^{-1}$とでは大きな差はなかった．

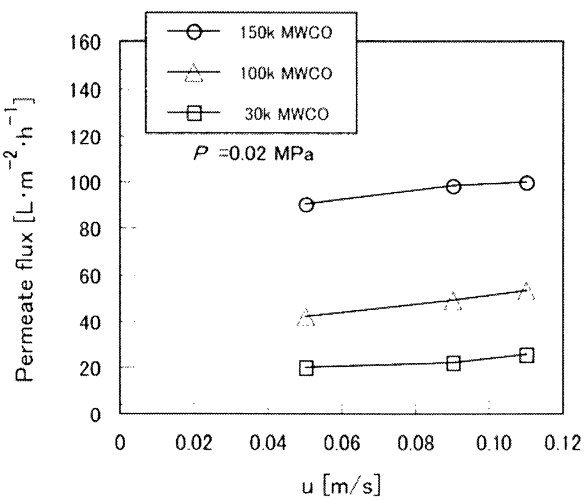


Fig. 5 Effect of feed velocity on terminate flux.

以上の結果および上記した装置特性の両者を勘案し，3種の膜の運転条件は膜面線速0.9 $m \cdot s^{-1}$，運転圧力0.02 MPaとするのが適当であると判断した．したがって，以下の実験はこの条件で運転し，膜の阻止率および透過流束の洗浄回復性について検討した．

3.4.2 3種の膜の阻止性能

Fig. 6に水溶性タンパク質，遊離脂肪酸および固形分の阻止率を示す．

水溶性蛋白質の阻止性能に関しては，分画分子量3万の膜は約80%，10万と15万が約75%であり，3万の膜の阻止性能がやや高かったが大きな差は見られなかった．

米中に存在する遊離脂肪酸はリノール酸，オレイン酸，パルミチン酸などであり，分子量は300前後である．したがって，タンパク質に比較し阻止率が低くなることを予想していたが，阻止率は約50%程度であった．3万，10万，15万の順に阻止率は低下したが，3種の膜で阻止性能に大差はみられなかった．これは，脂肪酸が蛋白質やデンプン粒に吸着している[13]ため透過が阻止されたこととデンプン粒子等の溶質等成分が膜面にダイナミック膜を形成し低分子量成分が阻止されたものと考える．脂肪酸が排水中でどのような状態で存在するか，また分離のメカニズムがどのようになっているかなどの残された問題はあるが，ここでは15万の膜でも50%程度の阻止率を示し，3万の膜の阻止率の方がやや高いものの，大差ないことを確認するにとどめ，前記の問題は今後の検討課題としたい．

分画分子量3万の膜の固形分阻止率は85%，分画分子量10万と15万の膜の固形分阻止率は80%程度であった．3万の膜は他の膜に比べてやや阻止性能は高かったが，大差は見られなかった．1次，2次洗米排水にはデンプン以外にヌカ成分が含まれるが，3次洗米排水以降の洗米等排水に含まれる固形分の主な成分はデンプンと考えられる．これら成分は膜で阻止されるが，低分

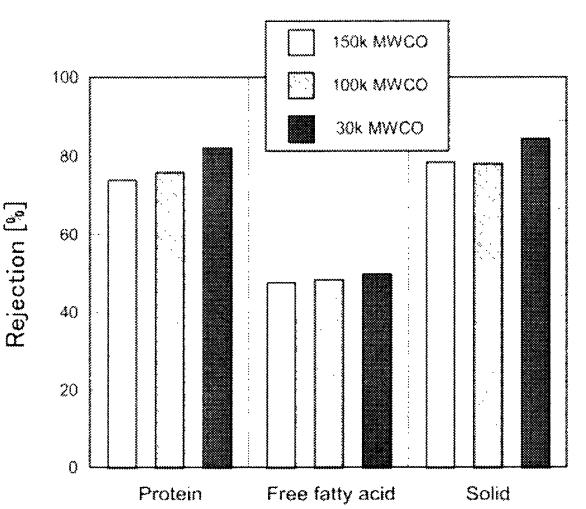


Fig. 6 Rejection of solutes and solid by UF membranes for mixed water of 3rd-, 4th-, 5th-washing drainage and soaking drainage.

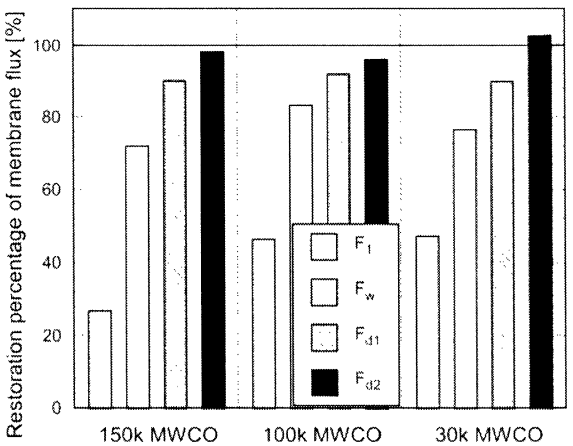


Fig. 7　Flux restoration of the UF membrane by cleaning after treatment of washing drainage. F_1: No cleaning after treatment, F_2: Hot water cleaning, F_{d1}: First chemical cleaning, F_{d2}: Second chemical cleaning.

子量の無機塩類等は膜を透過する．これら成分が固形分として測定されるため，阻止率が80%程度になったものと考える．

3.4.3　膜の洗浄回復性

3種の膜の洗米等排水処理直後の透過流束維持率とその後の各洗浄方法による透過流束の回復率をFig. 7に示す．

3.4.3.1　水洗浄回復性

洗米等排水を膜処理した直後の透過流束は，処理前の透過流束の20～35%程度まで低下したが，水洗浄を10分間行うと，75～80%まで透過流束が回復した．15万の膜の初期透過流束は他の膜より高かったため，排水処理を行ったあとの透過流束は著しく低下した．これは，15万の膜ではファウリングが他の膜より強く起こっているためである．しかし，膜表面を水で洗浄するだけで，75%程度まで透過流束が回復している点から，ファウリング成分の多くは膜の細孔内部に存在するのでなく，膜表面に堆積した形で存在しているものと考えられる．

3.4.3.2　洗剤洗浄回復性

水洗浄に引き続き，洗剤による洗浄を行った．どの膜も30分間，1回の洗浄で90%以上まで透過流束は回復し，2回洗浄した時点で95%以上まで回復し，膜種による洗浄回復性の差は見られなかった．

3.5　再生水で洗米した炊飯米の品質

2.8で述べた方法で洗米した炊飯米を，対照区として3点比較法[14]を用い研究室員をパネリストとして官能検査を行った結果をTable 5に示す．3点比較法とは，3点の試料の内，2点を同じ試料，1点を異なる試料とし異なる試料を当てさせる検査法である．

廃棄・UF処理区および廃棄·UF処理なし区ともに対照区と有意差がないことがわかった．

Table 5　Results of the sensory tests.

		Number of panelists	Right answer	Wrong answer	Significance
Discharge and UF treatment	1st	15	6	9	NS
	2nd	18	6	12	NS
Discharge and no UF treatment	1st	19	7	12	NS
	2nd	19	6	13	NS
No treatment (Whole usage of washing drainage)	1st	12	4	8	NS
	2nd	12	9	3	1% significant difference

NS: Not significant.

処理なし区では，リサイクル数1回は有意差がなく，リサイクル数2回では1%有意で差があることがわかった．

洗米水の水質による炊飯米の味の違いはごくわずかであるが，洗米等排水を何も処理せずそのまま2回リサイクルすると1%有意で炊飯米の香味に大きな影響が出る．しかし，洗米等排水をUF処理したものおよびUF処理しないものを2次～5次洗米水として用い，1次洗米水と浸漬水に新しい用水を用いることで2回リサイクルしても香味に有意差は現れなかった．

この結果は香味に関する品質であり，主としてヌカ臭が判断の基準になったものと考える．洗米により除去されるべきものに，保蔵安定性に関係する微生物や脂肪酸，餅の粘弾性に関係するタンパク質等が考えられ，これらのものがリサイクル水からできるだけ除去される方が品質の安定した包装餅を製造できるものと考えられる．15万の膜モジュールでほぼ満足できる品質の餅と膜透過流束が得られている点から，さらに分画分子量の大きな膜の性能評価に関しては今回の研究では行わないこととした．

冒頭にも述べたように餅の製品品質と洗米等用水の水質との関連が解明されなければならないが，本報告で提案する方法は餅の品質に影響を与えず，洗米等用水を数回リサイクルする方法として有効であることを示すものと考える．

4．結　　論

洗米等用水としてリサイクルする再生水には，包装餅の保蔵安定性の面から微生物を除去することはもちろんとして，タンパク質や脂肪酸等の品質に影響を与える成分をできるだけ除くことが好ましいと考えるが，予備試験等を踏まえて，排水の再生に要するコストとのバランスを考慮してNF膜に比較し，UF膜で処理することが好ましいと判断した．

洗米等排水の成分分析および粒径分布の測定から，1次・2次洗米排水には溶質成分も懸濁成分も多いことがわかり，これら排水以外の利用しやすい3次～5次洗米排水および浸漬排水を再生しリサイクルすること

にし，これらを混合した洗米等排水を試料として用い，以下の研究を行った．

分画分子量3万，10万および15万の3種の中空糸UF膜モジュールを用い，膜モジュールの選定を行った．

透過流束，溶質等成分の阻止性能さらに膜透過流束の洗浄回復性の点から分画分子量15万の膜が洗米等排水の処理に適していることがわかった．

処理しない洗米等排水を再利用するとヌカ臭さが餅についてしまうが，15万のUF膜で処理した再生水をリサイクル水として洗米に使用しても品質的な問題は生じないことがわかった．

包装餅の製造において，洗米によりどの成分を米から分離することが必要か，さらに，洗米等用水の水質と製品品質との関係についての研究が必要であり今後の研究を期待したい．

今後は，分画分子量15万の膜モジュールを用い，洗米次数別に洗米等排水を処理し，各排水処理に適した運転条件を検討し，総合的な排水利用システム構築のための研究を続ける予定である．

謝　辞

新潟大学の卒業論文作成研究で実験に携わってくれた，樋口史樹君，村田智晴君，堀口敦嗣君の協力に感謝する．

参考文献

[1] 渡辺敦夫；食品膜技術懇談会誌，**26**, 143–154 (2001)

[2] 早川利朗，伊賀上郁夫；米の水洗に関する研究：白米の電子顕微鏡観察と溶出成分，日本農芸化学誌，**53**, 321–327 (1995)

[3] 雑賀慶二；米加工利用の新技術『無洗米』，米飯食品ビジネス事典，pp.166–173 (株)サイエンスフォーラム (2001)

[4] 大坪研一；"米の科学"：竹生新治郎監修，石谷孝佑，大坪研一編集，朝倉書店 (1995)，p. 25

[5] 大坪研一；"米の科学"：竹生新治郎監修，石谷孝佑，大坪研一編集，朝倉書店 (1995)，p. 27

[6] 有坂詩美；"米の科学"：米菓：竹生新治郎監修，石谷孝佑，大坪研一編集，朝倉書店 (1995)，p. 146

[7] O. H. Lowry, N. J Rosenbrough, R. J. Randall; Pritein nesurement with the folin phenal reagent, J. Biol. Chem. 193, 265, 275 (1951).

[8] 大坪研一，柳瀬肇，石間紀男：比色法による米の脂肪酸濃度の測定ー貯蔵による米の品質変化とDuncombe法を改良して測定した脂肪酸度との関係についてー，食品総合研究所研究報告，51, 59-65 (1987)

[9] K. Kitahara, T. Tanaka, T. Suganuma, T. Nagahama; Release of Bound Lipidsm Cereal Starches upon Hydrolysis by glucoamglase, Carbohydrates, (6) 1, 74, (1997).

[10] 桐渕壽子，久保田紀久枝：ウルチ米およびモチ米の脂肪成分と熱糊化に伴う粘度との関係について，日本農芸化学会誌，**51**, 621–624 (1977)

[11] 生司一郎，倉沢文夫：もち，うるち米デンプンの粘度におよぼす脂肪の影響，家政学雑誌，**37** 127–130 (1985)．

[12] 目黒貴義，渡辺敦夫，城斗志夫，原崇：洗米過程における成分溶出がモチの品質におよぼす影響，日本食品科学工学会第48回大会講演集 p. 76 (2001)

[13] 石川雄章，吉沢淑：日本農芸化学会誌，洗米，浸漬および蒸きょうによる白米脂質の変化，48, 337–341 (1974)

[14] 山口静子；第6章6.4官能評価法，新・食品分析法，日本食品科学工学会，新・食品分析法編集委員会編，(1996) p. 802.

要　旨

包装餅工場を対象に，繁忙期と閑散期について工場内の用水使用量の調査を行った．洗米工程と浸漬工程ともに，シーズンによる違いはなく，米1トンあたり約5 m^3の用水が使用されており，両工程で工場全体の用水使用量の約60%に相当することがわかった．

そこで，包装餅の品質，とくに微生物による保蔵安定性を損なうことなく，餅製造工場の洗米等用水（ここでは，洗米用水と浸漬用水の両者を併せて洗米等用水とする．以下洗米等排水，洗米等工程についても同様の意味で用いる）費用と排水処理コストの低減を目的に洗米等排水を膜分離技術により再生し，洗米等用水としてリサイクルすることを目的に本研究を行った．

排水の再生には，予備試験の結果等からUFにより再生することとし，分画分子量3万，10万および15万の3種の中空糸UF膜モジュールを用い，膜モジュールの選定を行った．

また，洗米等排水の成分分析結果から，1次・2次洗米排水には溶質等成分（溶質と懸濁成分を合わせて溶質等成分とする）の濃度が高く，また予備実験の結果UF処理における透過流束が著しく低いことがわかった．したがって，1次・2次洗米排水は活性汚泥法で処理することにし，溶質等成分の少ない3次洗米排水以降のものを再生することにした．

3次洗米以降の洗米排水と浸漬排水を混合した洗米等排水を試料とし，UF処理による再生とリサイクルに関する研究を行った．

透過流束，高分子成分としてのタンパク質と低分子量成分としての脂肪酸の阻止性能，さらに，膜の洗浄回復性の点から分画分子量15万の膜が洗米等排水の処理に適していることがわかった．