

# 新蒸留法による酒質の改善研究

— 回分精留法による微量香味成分の蒸留挙動 —

化学部 ○安藤浩毅  
食品工業部 亀澤浩幸, 瀬戸口眞治  
鹿児島県酒造組合連合会 濱崎幸男  
鹿児島大学工学部 谷口 潔, 中野健治, 上村芳三, 幡手泰雄

## 1. はじめに

本格焼酎における酒質の向上, 製品の多様化を目指した研究開発の中で, 焼酎製造工程の一つである蒸留に着目した研究開発の例は数少なく, 1974年, 常圧蒸留法に対して減圧蒸留法が導入されて以来<sup>1)</sup>, 酒質を大きく変化させるような蒸留法は見つかっていない。その理由として, 従来の単式蒸留機(常圧)では, その操作に限界があると考えられる。

これに対し, 碇<sup>2)</sup>によって, 回分精留法におけるエタノール水溶液中の微量不純物の留出挙動について, 蒸留モデルが提唱された。この方法を用いると, 有用香味成分または不要成分が精留棚段あるいは留出過程で分離・濃縮され, それらの分割採取液をブレンドすることで微量香味成分の制御が可能となると期待されている。そこで, 筆者らは新たな試みとして, 本格焼酎の蒸留法に回分精留法を導入し, 100リットル規模の多段式回分精留機を用いた蒸留実験を行い, 従来の単式蒸留機にない蒸留挙動を得たので報告する。また, 碇のモデルを改編したモデル<sup>3)</sup>を用いて, 本装置の性能及び適用性について検討したので併せて報告する。

## 2. 実験

### 2. 1 実験装置及び試料

蒸留機は, ケミカルプラント(株)製の10段棚段式精留部を上部に設けた回分蒸留機を使用した。その概略図を図1に示す。精留塔部は内径209mm, 段間150mm, 各段に4個のバブルキャップを有し, また蒸留釜の仕込み容量は100リットルで, 加熱方式はスチル内の蛇管から加熱する間接加熱及び直接スチル内に蒸気を吹き込む直接加熱の兼用型である。本報では後者の直接加熱による蒸留(以下, 直接蒸留)を行った。蒸留に用いた甘藷モロミは大口酒造(協)で製造したものを使用し, 調整液は, 9.8wt%のエタノール水溶液100kgに表1に示す3種の微量香味成分をそれぞれの濃度で添加したものをを用いた。

### 2. 2 実験方法

蒸留計算に必要な精留棚及びコンデンサー部のホールドアップ量の測定は, 9.8wt%エタノール水溶液で予備実験を行い, 全還流状態で定常状態に達した後(以下, 全還流定常状態とする), 全精留棚及びコンデン

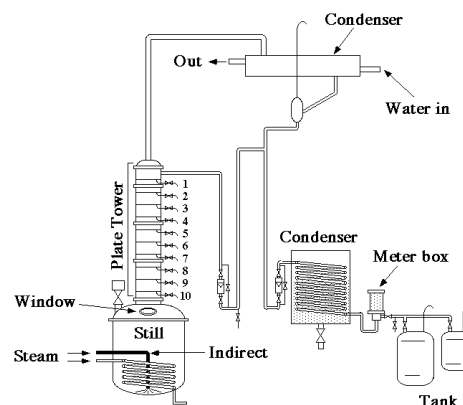


図1 実験装置のモデル図

表1 調整液の濃度

成分	wt%
エタノール	9.800
n-プロパノール	$1.002 \times 10^{-2}$
$\beta$ -フェネチルアルコール	$1.001 \times 10^{-2}$
カプリン酸エチル	$1.063 \times 10^{-3}$

サ一部の溜液全量を抜き出し、それぞれの重量及びエタノールの濃度を測定した。

回分精留モデルとの比較試験では表1の調整液を用い、全還流定常状態における全棚段及びコンデンサー部の溜液を約15mlサンプリングし、各成分の濃度を測定した。更に、再度全還流定常状態になった後、還流比3に設定し、前半は10分毎、後半は15分毎に溜出液をサンプリングし、各成分の濃度及び溜出液重量を測定した。また、甘藷モロミの蒸留では還流比を5に設定し、前半15分毎、後半20分毎にサンプリングを行い、同様に各成分の濃度及び溜出液重量を測定した。なお、蒸気吹き込み流速は全蒸留試験において1,830mol/hの一定とした。

### 2. 3 成分分析

蒸留によって得られた試料中のエタノール濃度は、25℃の密度から求め、また甘藷モロミのエタノール濃度は酒精計により測定した。

微量香味成分の濃度測定にはガスクロマトグラフ（HP製、HP5890 SERIES II）を用いて測定した。

## 3. 結果および考察

### 3. 1 単式蒸留機と回分精留機における蒸留挙動の差異

図2に溜出液に含まれるエタノール及び微量香味成分について、単式蒸留機と回分精留機の違いを蒸留曲線の形でその一例を示す。ここで同図に示す単式蒸留機のデータは、昭和61年科学研究費補助金で行われた鹿児島大学工学部の碓らの実験データから引用した。この結果から、甘藷モロミに含まれる各成分の初濃度に若干違いはあるが、主成分であるエタノールをはじめ、香味成分の蒸留挙動に大きな違いが見られた。特に溜出開始時の回分精留機のエタノール濃度は、単式蒸留機に比べモル濃度で1.5倍以上と非常に高った。また、最終アルコール濃度は両者とも約0.04であったが、仕込みモル量基準のエタノールのモル溜出率は単式蒸留機の0.22に比べ回分精留機は0.12と約半分のモル溜出率を示した。このことから、溜出液の全量は少ないがかなりアルコール度数の高い製品が得られていることがわかった。一方、微量香味成分の溜出挙動はn-プロパノール、i-アミルアルコール、カプリル酸エチルのように溜出過程で徐々に濃縮され、次第に濃度が減少する溜出挙動を示した。このような蒸留挙動（溜出挙動）は従来の単式蒸留機には見られない傾向であり、今後、製品の多様化を図る上で大変有望な蒸留法であると考えられる。

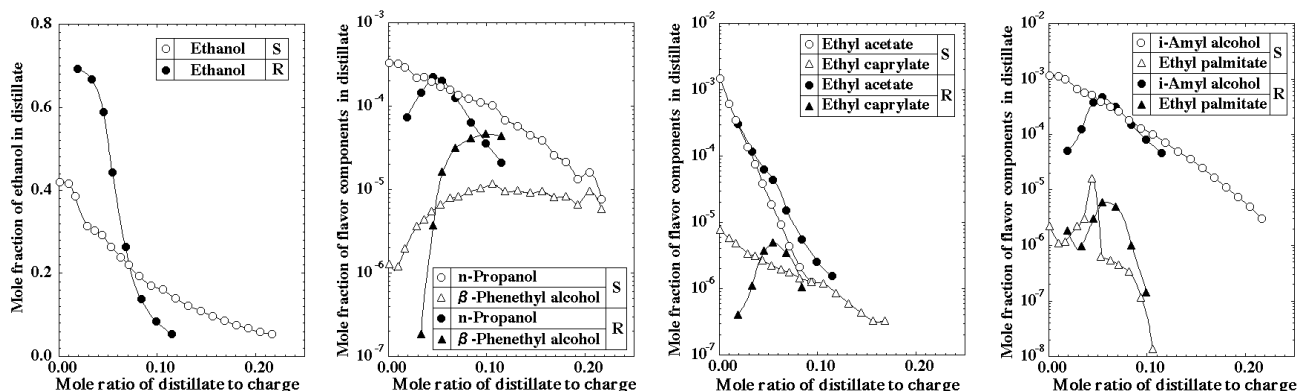


図2 単式蒸留機及び回分精留機による蒸留曲線の比較 (S:単式蒸留機, R:回分精留機)

### 3. 2 ホールドアップ量

表2に各精留棚及びコンデンサーのホールドアップ量を示す。9段目及び10段目は、他の棚段より多くのモル量が存在していたが、この原因として、スチル内に残存している蒸気がサンプリングの間

に凝縮し、両棚段に加算されたものと考えられる。

### 3. 3 蒸留速度及び蒸留時間

図3に還流比3で抜き出した時の時間と総モル量の関係を示す。留出時間と留出液量の総留出量の関係はほぼ直線性を示し、一定モル速度で留出していた。直線の傾きから、蒸留速度は258mol/hであることがわかった。また、その時の蒸留時間は、蒸気吹き込み開始から3.0時間、留出開始から2.1時間であった。

### 3. 4 エタノールの蒸留挙動

全還流定常状態におけるエタノールの塔内濃度分布を図4に示す。縦軸に棚段数 (D: 還流液, W: スチル), 横軸に濃度 (エタノールのモル分率) をとり、3回行った実験の平均値をプロットした。また、マーフリー気相段効率 ( $i$ 成分の  $n$ 段におけるマーフリー気相段効率は次式の、 $y_{i,n} = Emv_i \times y_{i,n}^* + (1 - Emv_i) \times y_{n+1}$  で定義され、 $y$  は気相のモル分率、 $y^*$  は液相  $x$  に平衡な気相のモル分率である。以下、 $Emv$  とする) を0.4から0.8に変化させて計算した結果も同図に実線で示す。計算結果と比較すると、エタノールの  $Emv$  は0.5であった。この値は、精留装置としては、性能的にやや低い値である。この原因の1つとして、精留棚の段間が管径に比べやや狭いため気液接触効率を悪くしているものと考えられる。

全還流定常状態から還流比3で抜き出した時のエタノールの蒸留曲線を図5に示す。横軸は、エタノール水溶液 (仕込み液) の全モル数を基準としたエタノールのモル留出率で表した。また、エタノールの  $Emv$  を0.5及び0.6で計算した結果も同図に実線及び点線で示す。この蒸留曲線の計算では、エタノールの  $Emv$  を0.6として計算した方がより実測値に近づくことがわかった。

### 3. 5 微量香味成分の蒸留挙動

全還流定常状態における各微量香味成分、 $n$ -プロパノール (以下、 $n$ -PrOHとする)、 $\beta$ -フェネチルアルコール (以下、 $\beta$ -PhenOHとする)、及びカプリン酸エチル (以下、EtC10とする) の塔内濃度分布を図6に示す。なお、実測値は2回の実験の平均値をプロットした。 $n$ -PrOHは本格焼酎の香味成分の中でも比較的高濃度で含まれ一般にフーゼル油と呼ばれている。この物質は、本実験において精留塔の6、7及び8段目に最も多く濃縮され、計算結果から  $Emv$  は0.6であった。 $\beta$ -PhenOHはバラ様香を持つ香气成分で、精留塔の下部程多く存在し、ばらつきはあるが  $Emv$  は0.4であった。EtC10は他の3種に比べ際だつ香りを有していないが、味成分として大きく関与する高級脂肪酸エステル類の一種で、9段目に最も多く濃縮されていた。また、EtC10の  $Emv$  は0.5であった。

図7に、前述に示す3種の微量香味成分の蒸留曲線を示す。また、同図に  $Emv$  をいくつか変化させ

表2 ホールドアップ量

冷却器	30.2	(エタノール水溶液)	
1段	13.8	6段	15.8
2段	15.7	7段	16.9
3段	16.1	8段	18.0
4段	15.6	9段	23.4
5段	15.3	10段	31.1

単位: mol

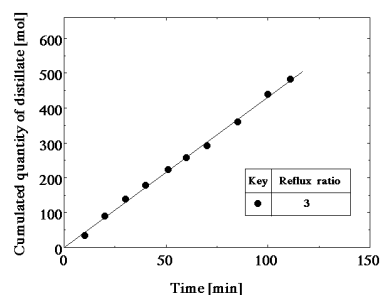


図3 留出液の累積留出量

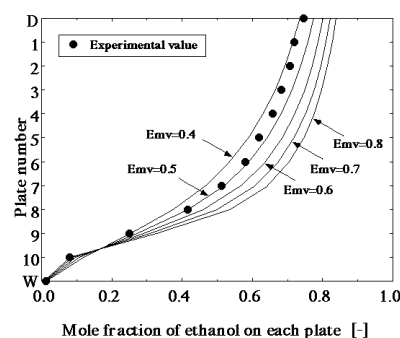


図4 全還流状態における棚段の濃度分布 (エタノール, 調整液)

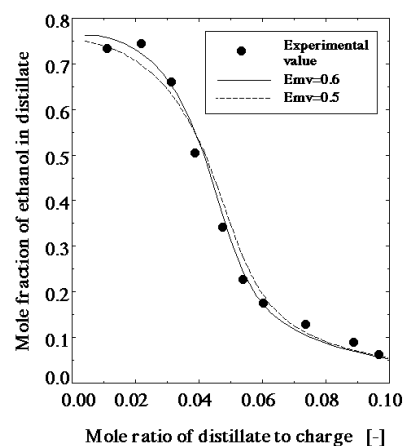


図5 留出曲線の実験値と計算値との比較 (エタノール, 調整液)

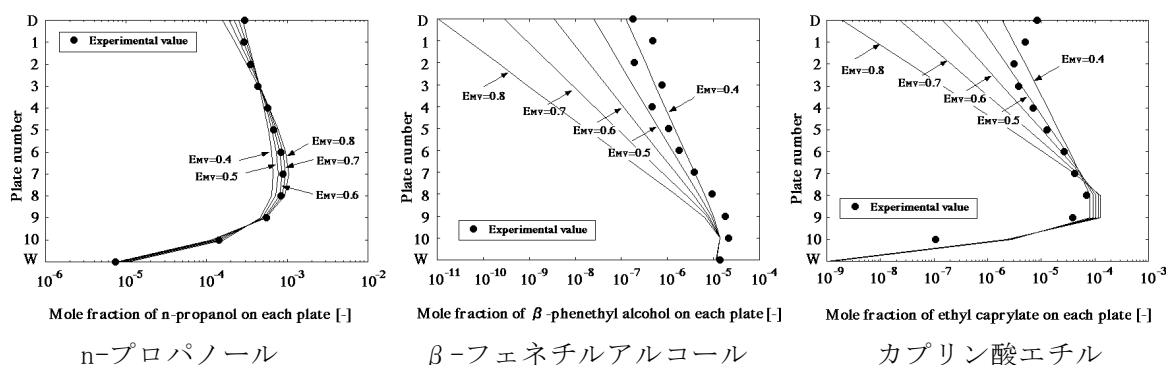


図6 全還流状態における微量香味成分棚段濃度分布の実測値と計算値の比較（調整液）

て計算した蒸留曲線も示す。n-PrOHの蒸留曲線はエタノールのモル留出率で約0.03，すなわち留出開始から約30分後に最大濃度に達し，次第に減少する傾向を示した。この蒸留半ばで最大値になる傾向は前述の甘藷モロミと同様であり，単式蒸留機にはほとんど見られない回分精留機の特徴であると考えられる。また，n-PrOHの計算による蒸留曲線はエタノール及びn-PrOHのE<sub>mv</sub>を変化させ，更に吹き込み蒸気の影響を考慮したが，実測値と一致しなかった。しかしながら，実測値の傾向は十分説明しており，計算による予測は可能であると考えられる。一方，β-PhenOH及びEtC10は両者ともエタノールのE<sub>mv</sub>を0.6，β-PhenOH及びEtC10のE<sub>mv</sub>を0.5で計算した時，最も実測値に近い蒸留曲線が得られた。

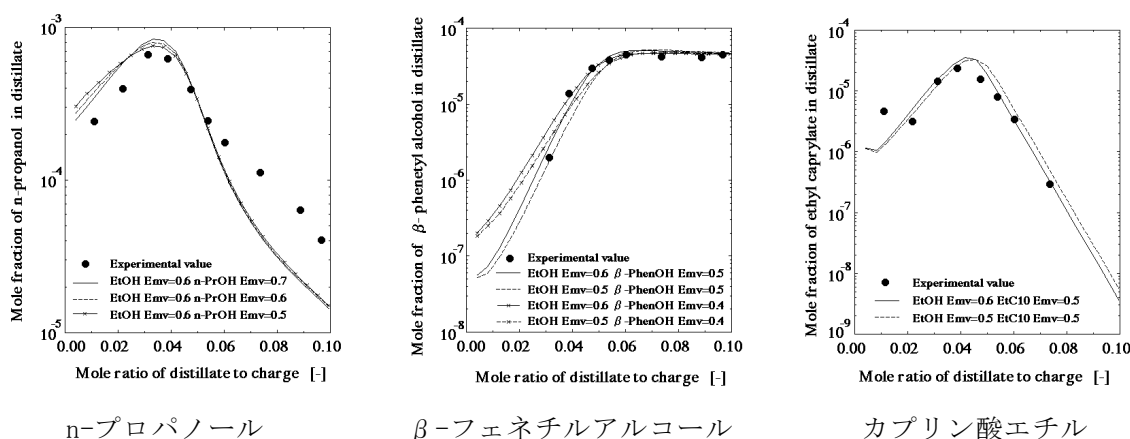


図7 微量香味成分の留出挙動の実測値と計算値の比較（調整液）

#### 4. おわりに

本格焼酎の酒質の向上，製品の多様化を目指して，焼酎の蒸留方法に回分精留法を導入し，スケールアップの前段階として100リットル規模の蒸留実験を行った。その結果，単式蒸留機には見られない回分精留機特有の蒸留挙動を見出した。また，数式化した回分精留のモデルにより，エタノール及び各微量香味成分の留出挙動を説明することができた。今後，このモデルを利用して焼酎の香味を左右する成分の蒸留挙動を事前に解析し，ブレンド技術の一助にしたいと考える。

#### 参考文献

- 1) 宮田章：日本醸造協会誌，**81**，170 (1986)
- 2) 碓醇：化学工学論文集，**19**，69-75 (1993)
- 3) 安藤浩毅，他：化学工学論文集，**22**，1318-1325 (1996)