

新蒸留法による酒質の改善に関する研究 - 焼酎用多段式回分精留機の性能試験 -

化学部 安藤浩毅 食品工業部 瀬戸口眞治, 亀澤浩幸, 濱崎幸男*
谷口 潔**, 中野健治***, 上村芳三****, 幡手泰雄****

Study on Improvement of Quality for HONKAKU Shochu using New Distilling Method - Test on efficiency of Batch rectification apparatus for Shochu Production -

Hiroki ANDO, Shinji SETOGUCHI, Hiroyuki KAMESAWA, Yukio HAMASAKI,
Kiyoshi TANIGUCHI, Kenji NAKANO, Yoshimitsu UEMURA and Yasuo HATATE

100リットル規模の焼酎用多段式回分精留機を用いて、蒸気吹き込み流量1,830mol/h、精留棚段数10段、全還流定常状態における塔内蒸気速度9.57mol/m²・s、還流比5の条件で10.8wt%アルコールを含む甘藷モロミ75kgの回分蒸留実験を行った結果、従来の単式蒸留機にない蒸留挙動を得た。また、9.8wt%のエタノール水溶液100kgにn-プロパノール、β-フェネチルアルコール及びカプリル酸エチルをそれぞれ0.01~0.001wt%の濃度で加えた調整液を用いて、還流比3の条件（他条件は甘藷モロミの条件と同一）で蒸留実験を行い、回分精留モデルによる装置の性能及び蒸留挙動、特に微量香味成分の蒸留挙動について検討した。その結果、全還流定常状態におけるマーフリー気相段効率、それぞれエタノールが0.5、n-プロパノールが0.6、β-フェネチルアルコールが0.4、カプリル酸エチルが0.5であり、各成分の蒸留曲線は、回分精留モデルを用いることによって、その留出挙動を説明することができた。

1. 緒言

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は、特に本格焼酎の特徴を大きく左右する原料の品種改良、麴菌や酵母の育種改良等によって行われてきた。

一方、焼酎製造工程の一つである蒸留に着目した研究開発は数少なく、1974年、常圧蒸留法に対して減圧蒸留法が導入されて以来¹⁾、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、その操作方法に限界あると考えられる。すなわち、ガス抜き、加熱法、蒸気圧制御による蒸留時間の制御等の操作で幾分酒質は変えられるが、酒質を大きく変えることは極めて困難である。また、操作以外に蒸留機の構造を一部改良し、エタノールの分縮に着目した研究報告^{2), 3)}もあるが、焼酎に含まれる微量香味成分の組成、あるいは留出挙動に大きな変化を与えるような結果は得られていない。

これに対し、碓⁴⁾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、本回分精留機のモデル化を碓のモデルに従って改編し、本装置の性能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Fig. 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、4段目、7段目で切り離せるようになっている。本蒸留機の仕込み容量は100ℓで、加熱方式はスチル内に設置された蛇管に蒸気を吹き込むことで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。発生した蒸気は、精留塔を通過した後、コンデンサーで冷却凝縮され1段目に還流されるようになっている。還流液の一部は更に冷却され、メ

*鹿児島県酒造組合連合会, **メルシャン(株), ***三和酒類(株), ****鹿児島大学工学部応用化学工学科

ートルボックスを通り、製品タンクに回収されるようになっている。また、還流比の設定は還流液流量計及び留出液流量計をモニターし、ニードルバルブを調整することで行えるようになっている。

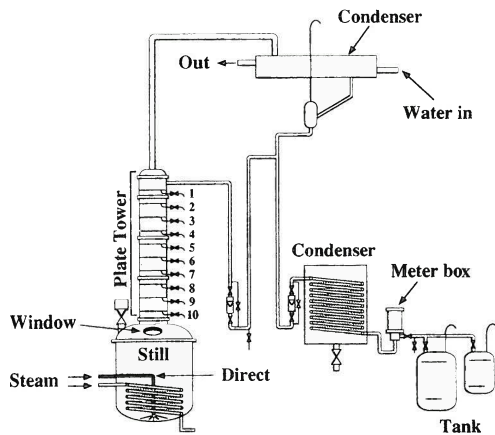


Fig. 1 Experimental apparatus

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%に調整したエタノール水溶液100kg及び9.8wt%エタノール水溶液にTable 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使用した。微量香味成分の濃度は分析の精度を考慮して、焼酎モロミ中に含まれる微量香味成分と比べ若干高めに調整した。

Table 1 Concentration of prepared solutions

Component	wt%
Ethanol	9.800
n-Propanol	1.002×10^{-2}
β -Phenethyl alcohol	1.001×10^{-2}
Ethyl caprylate	1.063×10^{-3}

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、エタノール水溶液を用い、全還流状態で定常状態に達した時（以下、全還流定常状態とする）、全棚段及びコンデンサー部の溜液全量を抜き出し、それぞれの重量を測定した。またその際、エタノールの濃度も測定した。なお、定常状態に要する時間の目安は、塔頂棚段溜液（1段目）の温度が一定になってから20分後とした。

全還流定常状態における精留塔内の濃度分布及び蒸留曲線の測定は、3種類の微量香味成分を含むエタノール水溶液を用い、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。この時、サンプリングコック部のデッドスペースを約10ml除去してからサンプリングを行った。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分毎に留出液をサンプリングし、各成分の濃度及び留出液重量を測定した。また、甘藷モロミの蒸留は還流比は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、得られた留出挙動は、単式蒸留機における蒸留挙動との比較に供した。

なお、本実験では、蒸気吹き込み条件を一定にするため、すべての蒸留において、仕込み液温度が88℃に達するまで24.5kPaの蒸気圧で加温し、88℃以降は9.8kPaに下げ、1,830mol/hの一定蒸気吹き込み流量で実験を行った。

2. 3 成分分析

2. 3. 1 エタノール

蒸留によって得られた試料中のエタノール濃度は、25℃の密度から求めた。密度測定にはデジタル密度計(Anton Paar製、DMA40型)を用い、あらかじめ作成した検量線より決定した。また、甘藷モロミのエタノール濃度は、国税庁所定分析法⁵⁾に従って酒精計により測定した。

2. 3. 2 微量香味成分

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)を使用した。内部標準物質としてn-アミルアルコールを用い、あらかじめ作成した各成分の検量線から、それぞれの微量香味成分濃度を決定した。測定条件を以下に示す。

- (1) カラム; HP製 Fused silica capillary column Ultra 2 Crosslinked 5% Phenylmethyl silicone(50m \times 0.32mm \times 0.52mm)
- (2) 注入口温度; 250℃
- (3) カラム温度; 50℃ (3min保持) \rightarrow 250℃ (15℃/min) \rightarrow 250℃ (15min保持)
- (4) スプリット比; 1:15
- (5) 検出器; F I D

3. 実験結果及び考察

3. 1 単式蒸留機と回分精留機における蒸留挙動の差異

Fig. 2に焼酎モロミ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蒸留挙動の一例を示す。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⁶⁾から引用した。なお、この時の蒸留は内田式の単式蒸留機を用い、甘藷モロミ98.9kg、平均蒸気吹き込み流量667mol/h、蒸留時間4.25h、常圧下の条件である。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。特に回分精留機の留出開始時のエタノール濃度は単式蒸留機に比べ、モル濃度で1.5倍以上と非常に高く、また、最終アルコール濃

度は両者とも約0.04であるのに対し、仕込みモル量基準のモル留出率も単式蒸留機の2.4に比べ1.3と約半分のモル留出率になっていることから、留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る。一方、微量香味成分の留出挙動は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留出過程で徐々

に濃縮され、次第に濃度が減少するような留出挙動を示すものも見られた。このような蒸留挙動（留出挙動）は、従来の単式蒸留機にはほとんど見られない傾向であり、単式蒸留機と回分精留機における焼酎の香味は大きく異なってくるものと考えられる。

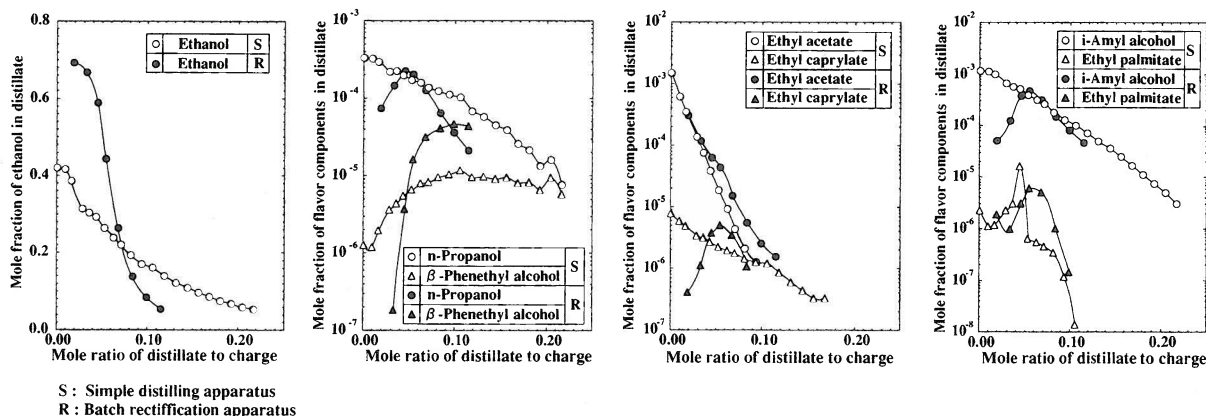


Fig. 2 Comparison of distillation curves by simple distilling apparatus with distillation curves by rectification apparatus

3. 2 回分精留機のモデルと仮定

回分精留機をFig. 3のようにモデル化した。なお、モデル化には碇のモデル⁴⁾と同様、以下の(1)~(9)の仮定を設け、更に2つの仮定(10)及び(11)を付け加えた。

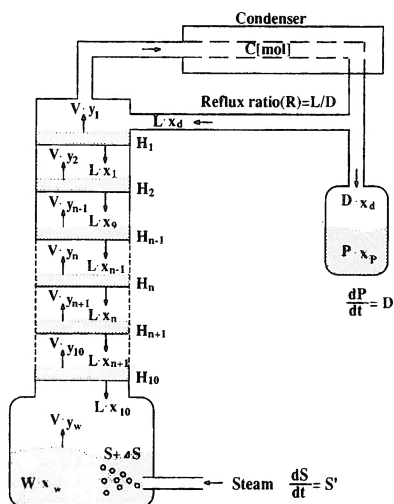


Fig. 3 Model of batch rectification

- (1) 冷却器は全縮器である
- (2) 塔内は、等モル流れである
- (3) 気相のホールドアップは無視する
- (4) 各段の液相ホールドアップは、モル量一定とする
- (5) 留出液貯槽の液量はモル量一定とする
- (6) 微量香味成分の存在は、水-エタノール系の気液平衡関係並びに蒸留に影響を及ぼさない
- (7) 微量香味成分の平衡化は、エタノール濃度の関数

- であるが微量香味成分自身の濃度には無関係である
- (8) 2つ以上の微量香味成分が存在しても、微量香味成分間相互作用は無視できる
- (9) エタノール及び各種の微量香味成分のマーフリー気相段効率に、それぞれ一定の値を与える
- (10) 直接加熱による生蒸気はすべてスチル内で凝縮し、仕込み液から通過しない
- (11) 還流液は、塔頂沸点で還流される

3. 2. 1 平衡関係及びマーフリー気相段効率

1気圧におけるエタノールの平衡関係は x_e を液相、 y_e を気相のモル分率とした時、Eq. (1)で表され、微量香味成分の平衡関係はエタノール液相濃度 x_m の関数として Eq. (2)で表される。

$$y_e = x_e + \frac{x_e \cdot (1 - x_e) \cdot (0.894 - x_e)}{-1.9957x_e^4 + 2.6914x_e^3 - 1.8337x_e^2 + 1.6185x_e + 0.07437} \quad (1)$$

$$y_m = K \cdot x_m$$

$$\log K = A \cdot (1 - x_m) + B \cdot x_m + x_m \cdot (1 - x_m) \cdot (C + D \cdot x_m + E \cdot x_m^2 + F \cdot x_m^3) \quad (2)$$

ここで、AからFは各微量香味成分に特有の定数である。これらの値は、オスマーの気液平衡装置を用いてエタノールの液相モル分率 x_m 及び微量香味成分の気液平衡比Kを測定し、 x_m 及び $\log K$ の相関関係を5次式の関数で表し、Eq. (2)のように変形すると得られる。今回計算に用いた微量香味成分の定数をTable 2にまとめた。

Table 2 Constants in the equation of equilibrium ratio

Minor component	A	B	C	D	E	F
n-Propanol	1.26981	-0.268322	-6.47533	19.1554	-28.7492	15.4427
β -Phenethyl alcohol	0.22029	-1.819440	-9.60644	22.4608	-24.4001	13.8753
Ethyl caprylate	3.69991	-1.955120	-24.1813	22.4608	-24.4001	28.9151

また、i成分のn段におけるマーフリー気相段効率の定義式は液相に平衡なモル分率 y^* をとした時、Eq. (3)で表される。

$$y_{i,n} = E_{MV,i} \cdot y_{i,n}^* + (1 - E_{MV,i}) \cdot y_{i,n-1} \quad (3)$$

3. 2. 2 全還流状態

Fig. 2 に示されるように、仕込み液量の初期値を W_0 、定常状態でのスチル液量を W 、コンデンサー部の溜液を C 、各棚段の溜液を H_n 、生蒸気をスチル内に吹き込んでから定常状態に達するまで蒸気量を S とすると、全体のマスバランスからEq. (4)が成り立つ。

$$W_0 = W + C + \sum_{n=1}^{10} H_n - S \quad (4)$$

なお、エタノールの仕込み液モル分率を x_{ew0} 、定常状態でのスチル及び各段のエタノールのモル分率を x_{ew} 、 $x_{en(n=1-10)}$ 、コンデンサー部のエタノールモル分率を x_{ed} とするとエタノールのマスバランスから Eq. (5)が成り立つ。

$$W_0 \cdot x_{ew0} = W \cdot x_{ew} + C \cdot x_{ed} + \sum_{n=1}^{10} (H_n \cdot x_{en}) \quad (5)$$

Eq. (5)を x_{ew} について整理すると

$$x_{ew} = \frac{W_0 \cdot x_{ew0} - C \cdot x_{ed} - \sum_{n=1}^{10} (H_n \cdot x_{en})}{W_0 - C - \sum_{n=1}^{10} H_n + S} \quad (6)$$

1 段目からスチルに落ちる液速度を L [mol/h]、スチルから上昇する蒸気速度を V [mol/h]、液組成と蒸気組成は平衡関係にあると仮定するとスチルについてはEq. (7)が成り立つ。

$$L \cdot x_{e10} = V \cdot y_{ew} \quad (7)$$

また、等モル流れにあると仮定すると $L=V$ よりエタノールについてのマスバランスからEq. (7)はEq. (8)で表される。

$$x_{e10} = y_{ew} \quad (8)$$

1 0 段目の棚段についてはマスバランスよりEq. (9)が成り立つ。

$$L \cdot x_{e9} + V \cdot y_{ew} = L \cdot x_{e10} + V \cdot y_{e10} \quad (9)$$

Eq. (8)より

$$x_{e9} = y_{e10} \quad (10)$$

同様にn段目のマスバランスはEq. (11)が成り立つ。

$$x_{e(n-1)} = x_{en} + y_{en} - y_{e(n+1)} \quad (11)$$

1 段目の棚段についてはマスバランスよりEq. (12)が成り立つ。

$$x_{ed} = x_{e1} + y_{e1} - y_{e2} \quad (12)$$

スチルから蒸発するエタノールの蒸気組成 y_{ew} はEq. (1)より求められることから、

$$y_{ew} = f(x_{ew}) \quad (13)$$

更に、各段から蒸発する理想エタノールの蒸気組成 y_{en}^* も同様にして Eq. (1)より求められ、各棚段から蒸発する実際のエタノールの蒸気組成 y_{en} はEq. (3)より求められる。

そこでEq. (13)より x_{ew} を仮定しEq. (8)、Eq. (10)、Eq. (11)、Eq. (12)を順番に計算しEq. (6)と等しくなるようなスチル濃度 x_{ew} 、各棚段濃度 $x_{en(n=1-10)}$ 、及び還流液濃度 x_{ed} を求めた。また各微量香味成分についても、微量香味成分濃度はエタノール濃度の関数であることからEq. (2)を用いてエタノールと同様の計算を行った。ここで、計算を行う際、コンデンサー溜液量 C 、各段のホールドアップ量 $H_{n(n=1-10)}$ 、吹き込み蒸気量 S は実測値を用いた。

3. 2. 3 蒸留曲線

Fig. 3 に示されるように、還流比 R で留出を開始した場合、スチルについてマスバランスよりEq. (14)が成り立つ。

$$\frac{d\{(W+S) \cdot x_{ew}\}}{dt} = L \cdot x_{10} - V \cdot y_w \quad (14)$$

x_{ew} について整理すると

$$\frac{dx_{ew}}{dt} = \frac{x_{ew} - (R+1) \cdot y_{ew} + R \cdot x_{10}}{W_0 - C - \sum_{n=1}^{10} H_n - D \cdot t + S + S' \cdot t} \quad (15)$$

ここで $R (=L/D)$ は還流比、 S' は生蒸気の吹き込み蒸気速度を表す。各 n ($n=1 \sim 9$) 段についてのマスバランスはEq. (16)が成り立つ。

$$\frac{d(H_n \cdot x_{en})}{dt} = (L \cdot x_{e(n-1)} + V \cdot y_{e(n+1)}) - (L \cdot x_{en} + V \cdot y_{en}) \quad (16)$$

x_{en} について整理すると

$$\frac{dx_{en}}{dt} = \frac{1}{H_n} [(R+1) \cdot (y_{e(n+1)} - y_{en}) - R \cdot (x_{e(n-1)} - x_{en})] \quad (17)$$

1 段目についてのマスバランスはEq. (18)が成り立つ。

$$\frac{d(H_1 \cdot x_{e1})}{dt} = (L \cdot x_{ec} + V \cdot y_{e2}) - (L \cdot x_{e1} + V \cdot y_{e1}) \quad (18)$$

x_{e1} について整理すると

$$\frac{dx_{e1}}{dt} = \frac{1}{H_1} [(R+1) \cdot (y_{e2} - y_{e1}) - R \cdot (x_{ed} - x_{e1})] \quad (19)$$

コンデンサー部溜液のマスバランスはEq. (20)が成り立つ。

$$\frac{d(C \cdot x_{ed})}{dt} = V \cdot y_{e1} - (D+L) \cdot x_{ed} \quad (20)$$

x_{ed} について整理すると

$$\frac{dx_{e,d}}{dt} = \frac{1}{C} [(R+1) \cdot (y_{e,1} - x_{e,d})] \quad (21)$$

製品タンクに溜まる溜液をP, その時のエタノールモル分率を $x_{e,p}$ とすると, 製品タンクのマスバランスはEq. (22)が成り立つ。

$$\frac{d(P \cdot x_{e,p})}{dt} = D \cdot x_{e,d} \quad (22)$$

$x_{e,p}$ について整理すると

$$\frac{dx_{e,p}}{dt} = \frac{1}{P} (x_{e,d} - x_{e,p}) \quad (23)$$

以上のEqs. (15), (17), (19), (21), (23)及びEqs. (1), (3)を用い, ルンゲ・クッタ・ギル法により連立微分方程式を解き, エタノール溜出液濃度 $x_{e,d}$ を求めた。ここで, 計算を行う際, スチル内の成分の初期値は全還流定常状態で求めた計算値を用い, それ以外のコンデンサー溜液濃度, 棚段の濃度, ホールドアップ量, 吹き込み蒸気速度及び蒸留速度は実測値を用いた。また, 各微量香味成分の計算では全還流定常状態の時と同様, エタノール液相濃度 x_m の関数として各微量香味成分の溜出液濃度 $x_{m,d}$ を求めた。なお, 計算に用いたパーソナルコンピュータはNEC(株)のPC-9801FAであり, QuickBASICでプログラミングを行った。

3. 3 ホールドアップ量

ホールドアップ量はシミュレーションを行う上で, 必要不可欠な因子である。そこで, 全還流定常状態においてコンデンサー及び精留塔棚段の溜液を全量抜き出し, 重量及びエタノール濃度を測定した。Table 3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。各棚段のホールドアップ量は, 本蒸留機の各棚段が等容積であることから近似的に当モル存在する。しかしながら, 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。この理由として, サンプルングと同時に蒸気吹き込みを停止したが, スチル面に備えつけられている覗き窓から観察した結果, スチル液面はまだ沸騰状態にあることから, スチル内に残存している蒸気がサンプルング中に9段及び10段目棚段で凝縮し, 特に10段目ではその凝縮量が多く, サンプルング量に影響を与えたものと推察される。

Table 3 Holdup in condenser and on plates

condenser		30.2		(aqueous ethanol solution)	
plate 1	13.8	plate 6	15.8		
plate 2	15.7	plate 7	16.9		
plate 3	16.1	plate 8	18.0		
plate 4	15.6	plate 9	23.4		
plate 5	15.3	plate 10	31.1		

unit : mol

3. 4 蒸留速度及び蒸留時間

Fig. 4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。溜出時間と溜出液量の総溜出量の関係はほぼ直線性を示し, 一定モル速度で溜出していた。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, 溜出開始から2.1時間であった。

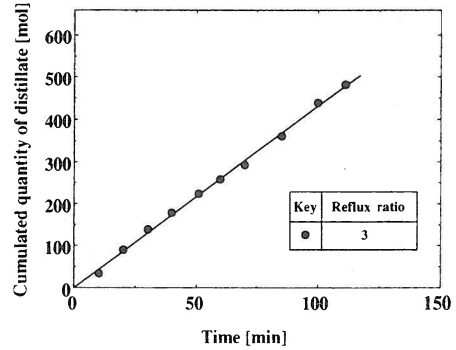


Fig. 4 Cumulated quantity of distillate

3. 5 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Fig. 5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, エタノールのマーフリー気相段効率は0.5であった。この値は, エタノールを濃縮する装置として, 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。

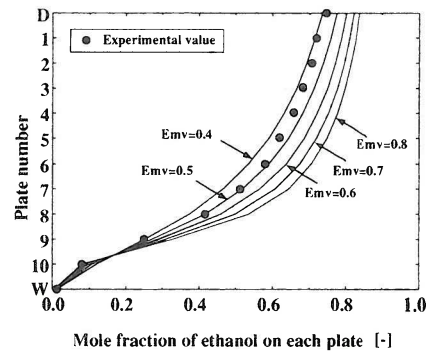


Fig. 5 Comparison of calculated concentration profiles with experimental values on each plate in distillation of the prepared solutions at total reflux (Experimental values are averages of three times)

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Fig. 6に示す。蒸留曲線はエタノール水溶

液(仕込み液)の全モル数を基準としたエタノール水溶液の留出率に対するエタノールのモル分率で表した。また、マーフリー気相段効率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。この結果から、エタノールの留出挙動では、マーフリー気相段効率を0.6として計算した方がより実測値に近い蒸留曲線を得ることができた。

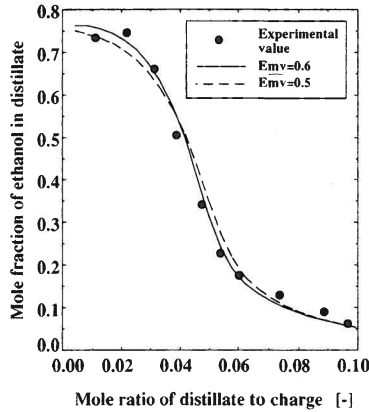


Fig. 6 Comparison of calculated distillation with experimental values in distillation of the prepared solution

3. 6 微量香味成分の蒸留挙動

全選流定常状態における各微量香味成分, n-プロパノール, β -フェネチルアルコール, 及びカプリル酸エチルの

塔内濃度分布をFig.7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-プロパノールは本格焼酎に含まれる微量香味成分の中でも比較的高濃度であり^{7), 8)}, 一般にフーズル油^{7), 8)}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、計算結果からマーフリー気相段効率は0.6であった。 β -フェネチルアルコールはバラ様香を持つ香氣成分⁷⁾で、精留塔の下部程多く存在し、ばらつきはあるがマーフリー気相段効率は0.4であった。カプリル酸エチルは他の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⁹⁾で、9段目に最も多く濃縮されていた。また、マーフリー気相段効率は0.5であった。なお、全体的に還流液(D)及び1段目の濃度は計算結果と大きく異なる傾向を示しているが、この傾向は碓ら¹⁰⁾の報告と同様の結果が得られ、原因については今のところ不明である。おそらく、蒸留開始後、還流が始まるまでは精留棚に溜液が存在していないため、エタノール濃度の希薄化に伴って析出してきた脂溶性の微量香味成分が一部微粒子となって飛沫し、エタノール蒸気に伴って塔頂まで一挙に上昇したのではないかと考えられる。この現象に関しては、精留棚の溜液存在下で蒸留を開始した場合も起こりうるかどうか再度検討する必要がある。

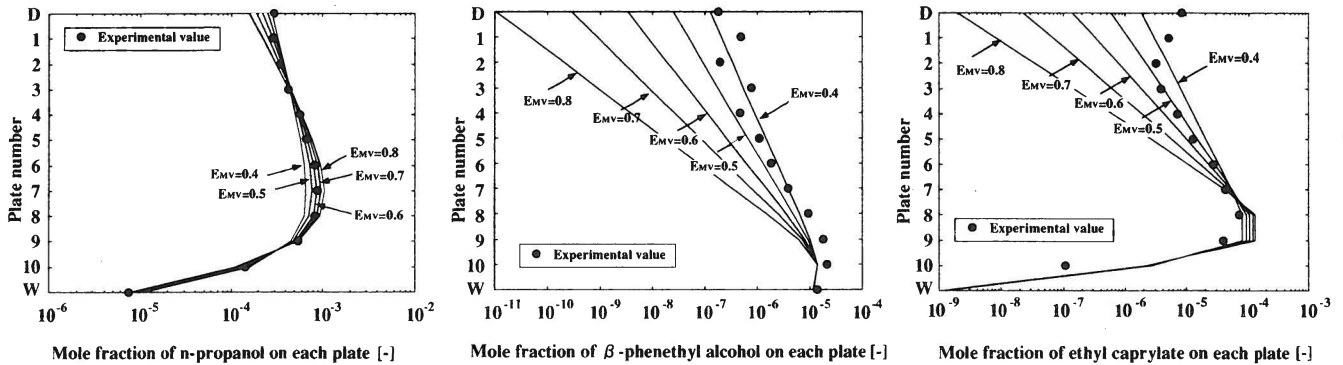


Fig. 7 Comparison of calculated concentration profiles with experimental values on each plate in distillation of the prepared solutions at total reflux (Experimental values are the averages of two times)

Figs. 8, 9及び10に、還流比3で抜き出した時のn-プロパノール, β -フェネチルアルコール及びカプリル酸エチルの蒸留曲線を示す。また、同図にエタノール及び微量香味成分のマーフリー気相段効率をいくつか変化させて計算した蒸留曲線も示す。Fig. 8のn-プロパノールの蒸留曲線はモル留出率で約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す。この蒸留半ばで最大値になる傾向は前述の甘藷モロミ(3.1項)と同様であり、単式蒸留機¹¹⁾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、計算によるn-プロ

パノールの蒸留曲線はエタノール及びn-プロパノールのマーフリー気相段効率を変化させ、更に吹き込み蒸気の影響を考慮したが、実測値には一致しなかった。しかしながら、実測した蒸留曲線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、Fig. 9の β -フェネチルアルコール及びFig. 10のカプリル酸エチルに関する実験結果は両者ともエタノールのマーフリー気相段効率0.6, β -フェネチルアルコール及びカプリル酸エチルのマーフリー気相段効率0.5で計算した時、最も実測値に近い蒸留曲線を得ることができた。

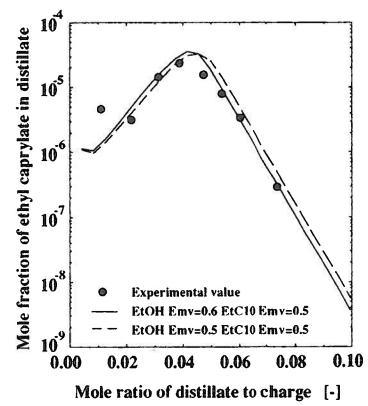
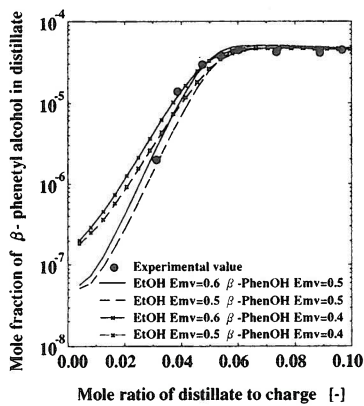
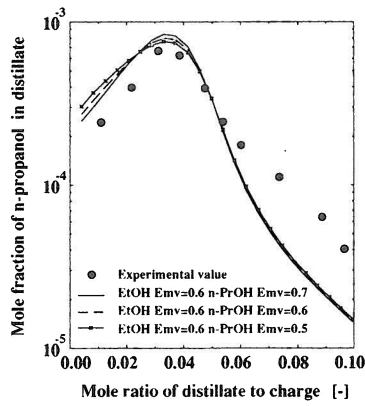


Fig. 8 Comparison of calculated distillation curves with experimental values in distillation of the prepared solution

EtOH Emv : Murphree vapor efficiency of ethanol
n-PrOH Emv : Murphree vapor efficiency of n-propanol

Fig. 9 Comparison of calculated distillation curves with experimental values in distillation of the prepared solution

EtOH Emv : Murphree vapor efficiency of ethanol
 β -PhenOH Emv : Murphree vapor efficiency of β -phenethyl alcohol

Fig. 10 Comparison of calculated distillation curves with experimental values in distillation of the prepared solution

EtOH Emv : Murphree vapor efficiency of ethanol
EtC10 Emv : Murphree vapor efficiency of ethyl caprylate

4. 結 言

焼酎に含まれる微量な香味成分含有量の制御を目的として、焼酎モロミの蒸留法に回分精留法を導入し、甘藷モロミ及び3種の微量香味成分を含むエタノール水溶液を用いた100リットル規模の蒸留実験を行った。その結果、10段棚段式回分精留機の性能及び蒸留挙動について以下の知見を得た。

- (1) 単式蒸留機と回分精留機ではその蒸留挙動に大きな違いが見られた。
- (2) 全還流定常状態におけるマーフリーの気相段効率及び蒸留曲線を計算するため、各棚段のホールドアップ量を測定した結果、精留塔下部の9段目及び10段目は、他の棚段に比べ、モル量として多く存在していた。
- (3) 全還流定常状態におけるマーフリー気相段効率を計算した結果、エタノールは0.5、n-プロパノールは0.6、 β -フェネチルアルコールは0.4、カプリル酸エチルは0.5であった。
- (4) 還流比3における留出速度は258mol/hであり、一定モル速度で留出していた。また、蒸気吹き込み開始からの蒸留時間は3.0時間、留出開始から2.1時間であった。
- (5) 回分精留モデルを用いることによって、還流比3における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。

謝 辞

本研究は、日本酒造組合中央会鹿児島県本格焼酎技術開発研究システムの経済的援助を受けて行った。また、大口酒造(協)に甘藷モロミを提供して頂いた。記して謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) 宮田章: 日本醸造協会誌, **81**, 170(1986)
- 2) 工藤哲三, 金丸一平, 都築太左衛門: 日本醸造協会誌, **78**, 977(1983)
- 3) 碓醇, 幡手泰雄, 西野剛, 飯山慎哉, 濱崎幸男: 化学工学論文集, **17**, 22-28(1991)
- 4) 碓醇: 化学工学論文集, **19**, 69-75(1993)
- 5) 注解編集委員会編: "第四回改訂国税庁所定分析法", 財団法人日本醸造協会(1993)p230
- 6) 碓醇: 昭和61年度科学研究費補助金研究成果報告書, 1987
- 7) 西谷尚道: 日本醸造協会誌, **75**, 641(1980)
- 8) 菅間誠之助, 椎木敏, 鈴木昭紀: 日本醸造協会誌, **64**, 303(1969)
- 9) 西谷尚道: 日本醸造協会誌, **75**, 944(1980)
- 10) 碓醇, 幡手泰雄, 椋山亮: 旭硝子工業技術奨励会研究報告, **38**, 295-300(1981)
- 11) 碓醇, 幡手泰雄, 西野剛, 飯山慎哉, 濱崎幸男: 化学工学論文集, **16**, 652-659(1990)