

多段定常蒸留装置によるモデル焼酎もろみの蒸留

塩盛弘一郎¹⁾・藤原誉司^{2,3)}・高瀬良和³⁾・奥野博紀³⁾・幡手泰雄⁴⁾・柏田雅徳⁵⁾・河野恵宣⁶⁾

Distillation behavior of model *shochu* mush with a multistage steady state distiller

Koichiro SHIOMORI, Takashi FUJIWARA, Yoshikazu TAKASE, Hironori OKUNO,
Yasuo HATATE, Masanori KASHIWADA, and Yoshinobu KAWANO

Abstract

The distillation behavior of ethanol solution containing miner components was investigated using a steady state distiller, which have been done continuous feed of *shochu* mush and continuous discharge of residue solution from still. The distillers were serially connected for a multistage operation. The concentration of ethanol and miner components in distillate was constant during distillation depending on the stage number of the distillers and affected by the feed flow rate and the reflux ratio.

Key words :

Model *shochu* mush, Distillation, Multistage steady state distiller, Miner components

1. 緒言

焼酎は、芋、米などを主原料として麴と酵母によってアルコール発酵を行ったもろみを単蒸留して精製した蒸留酒で、その組成は香味に関連する各種微量成分の蒸留釜内での気液平衡関係に依存する¹⁻³⁾。このため、蒸留操作は焼酎の味と香りに大きく影響する。焼酎の蒸留は、伝統的な常圧蒸留と昭和47年頃より導入された減圧蒸留で行われている⁴⁾。それぞれの蒸留法で利点と欠点を有するが、一般的に芋焼酎は常圧蒸留、穀類焼酎は減圧蒸留が行われることが多い。これまで焼酎の製造に関する種々の技術開発が行われ、焼酎の品質は洗練されたものとなってきた⁵⁾。しかしながら、蒸留法については、留出液の分画採取、圧力可変式蒸留⁴⁾や多段精留器の使用⁶⁾などがあるものの、焼酎用微生物の育種および発酵

や原料における技術開発⁵⁾に比べ新規な蒸留法の開発はあまり行われていない。

乙類焼酎の蒸留法である単式蒸留法は、蒸留釜に焼酎もろみを仕込み、加熱または蒸気を吹き込みすることにより蒸気を発生させて蒸留を開始し、蒸気を冷却して焼酎原酒を得る。蒸留後、蒸留残渣を排出し、釜を洗浄して次の蒸留仕込みを行う。この単式蒸留では蒸留釜に入れた焼酎もろみが一定量であるために蒸留釜内のもろみ中の揮発成分の濃度が蒸留の経過と共に変化し、これに伴って蒸気を冷却して得た留出液に含まれる微量成分の濃度も変化する。このため最終的に焼酎原酒となる留出液は、蒸留開始から蒸留終了までの一定時間内に各微量成分の濃度が変化しながら留出したもので多種の揮発成分が混在したものである。焼酎の蒸留工程で有用香味性分または不要成分を分離・濃縮し、それらの分割採取液をブレンドすることが可能であれば、微量香味成分の含有量を積極的に制御することが出来、今までにない特徴を持った新規な焼酎の開発が期待される。

筆者らは、焼酎もろみ中に含まれる微量香味成分の最適な分割採取を目的として、原料もろみを一定流速で蒸留釜に供給すると同時に釜内の蒸留液を一定流速で抜

1) 物質環境化学科准教授

2) 物質工学専攻大学院生

3) 霧島酒造株式会社

4) 鹿児島大学工学部応用化学工学科教授

5) 宮崎県機械技術センター

6) 宮崎大学名誉教授

き出しながら蒸留を行う定常蒸留装置, ならびにこの蒸留装置を複数直列に接続し前段の釜内の蒸留液を次段へ供給する多段定常蒸留操作を開発した⁷⁾。本蒸留操作では釜内のもろみ組成が蒸留操作の間一定に保たれることから留出液の組成が一定に保たれるという特徴がある。さらに各段の送液速度や還流比などの操作条件を制御することにより留出液の組成制御が期待できる。本研究では, 多段定常蒸留装置を用いてエタノールと数種の香味成分を含んだモデル焼酎もろみを用いて種々の操作条件で蒸留を行い, 多段定常蒸留操作の蒸留特性について明らかにした。

2. 実験方法

2. 1 試薬

微量成分として酢酸エチル, n-プロパノール, iso-ブタノール, iso-アミルアルコールおよび β -フェネチルアルコール(いずれも和光純薬工業製試薬特級)を用いた。これらを所定量添加したエタノール水溶液を調製し, モデル焼酎もろみとした。本研究で用いたモデル焼酎もろみの組成を表1に示す。

2. 2 蒸留装置

実験に使用した定常蒸留装置を図1に示す。本体はガラス製で, 蒸留缶, 充填管, 還流弁および冷却管を取り付けた。充填管には外径10mm高さ10mmのガラス管を充填した。

多段定常蒸留操作の概略図を図2に示す。定常蒸留装置の蒸留缶を直列に3つ連結し, もろみの供給, 蒸留液の抜き出しと次段への供給は, チューブポンプ(MasterFlex 7553-80, コールパーマー製)で行った。もろみの供給側より順に第1段, 第2段, 第3段とした。

2. 3 蒸留操作

表1 モデル焼酎もろみの組成

Compounds	Concentration [wt%]
water	87.8
ethanol	12.0
ethyl acetate	2.00×10^{-2}
n-propyl alcohol	1.00×10^{-2}
isobutyl alcohol	5.00×10^{-2}
isoamyl alcohol	5.00×10^{-2}
β -phenethyl alcohol	5.00×10^{-2}

第1段蒸留缶にモデルもろみを1500ml仕込み, オイルバスで間接加熱した。缶液から蒸気が精留装置上部へ上昇し還流管より凝縮液が下降した時点から, 所定の還流比 $R[-]$ により充填管への還流および留出口からの留出を行った。同時に第1段蒸留缶へ送液ポンプにより一定の供給液量 F_0 [g/min]でモデルもろみを供給し, 缶液を F_1 [g/min]で抜き出した。この時, 蒸留缶内の缶液と供給液を均一に混合させるため, 供給液が蒸留缶内の底部に供給されるように供給液ノズルを設置した。また, 蒸留缶内の缶液の抜き出しは, 缶液の液量が1500mlとなる位置に抜き出しノズルを固定して行った。この抜き出しノズルの高さを変えることにより, 蒸留缶内の缶液体積を変えることが可能である。第1段蒸留缶への供給液量および各段の蒸留缶の缶液体積, 加熱量および還流比を一定で操作した。定常蒸留装置の蒸気温度および蒸留缶内の缶液温度が一定になった時点を目安に定常状態に達

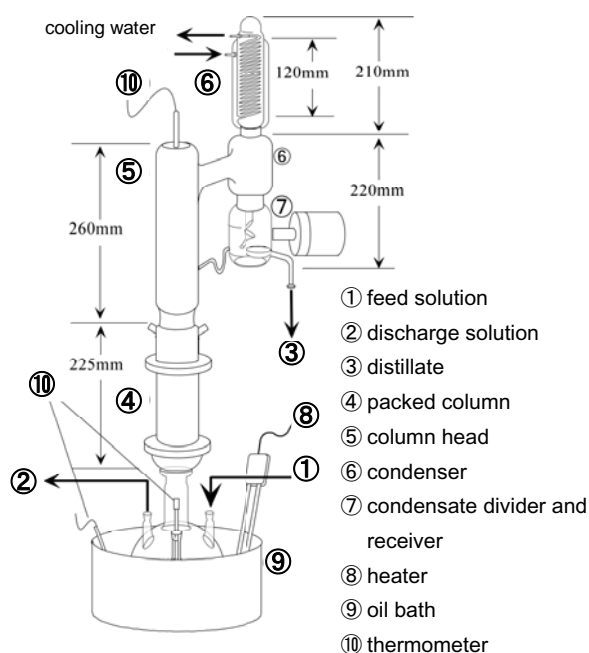


図1 定常蒸留装置

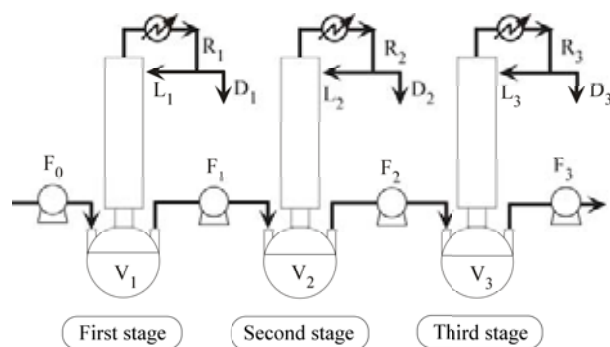


図2 多段定常蒸留操作

したとして、一定の留出液量 D_1 [g/min] で留出させた。同時に第 1 段蒸留缶の缶液を一定の流出速度 F_1 [g/min] で抜き出した。還流比を操作し留出液量 D_1 [g/min] を変えることにより、第 1 段缶液の缶出液量 F_1 [g/min] も変化する。

第 1 段蒸留缶より抜き出した缶液は、第 2 段蒸留缶に供給液量 F_1 [g/min] で送入了。第 2 段蒸留缶の缶液量が 1500 ml に達した後に、第 2 段の缶液の抜き出しおよび蒸留缶の加熱を開始した。蒸気が上昇し還流管より凝縮液が発生した時点から、所定の還流比 R [-] により D_2 [g/min] で留出し、第 2 段蒸留缶の缶液が 1500 ml 一定となるように一定の流出速度 F_2 [g/min] で抜き出した。第 2 段蒸留缶より抜き出した缶液は、第 3 段蒸留缶に供給液量 F_2 [g/min] で送入了。第 3 段でも第 2 段と同様の操作を行った。

各段の缶液温度、蒸気上昇管内の蒸気温度が一定になった時点定常状態とし 30 min 毎に各段からの留出液および蒸留缶内の缶液を採取した。

本研究では、各段の蒸留缶内の缶液体積は一定に設定し、第 1 段蒸留缶への供給液流速 F_0 [g/min] および各段の還流比 R [-] を変化させた。

2. 4 成分分析

採取した試料のエタノール濃度はデジタル密度計 (DMA38, アントンパール社製) で測定した。酢酸エチル、およびアルコール類濃度は、キャピラリーカラム DB-5(内径 0.53mm, 長さ 30m, J&W Scientific 社製) を備えたガスクロマトグラフ (GC-17A, 島津製作所製; キャリアーガス: He; 検出器: FID) を用いて定量した。

3. 実験結果および考察

3. 1 蒸留缶への供給液流速の影響

各段における還流比を 1 に固定し、表 2 に示す操作条件で各段の供給液量を変化させて蒸留を行った。蒸留が定常に達し留出を開始してからの蒸留時間と留出液中

表 2 蒸留缶への供給液流速変化の実験条件

Run No.	F_0	F_1	F_2	F_3
	[g/min]			
1	23.4	22.5	20.4	19.1
2	20.4	19.3	17.4	15.8
3	17.1	16.0	14.3	15.8
4	14.0	12.8	11.3	10.1
5	10.5	9.34	8.11	7.07

のエタノールのモル分率 $X_{D, Et(OH)}$ の関係を図 3 に示す。留出時間によらずエタノールのモル分率は一定となった。第 1 段から第 2 段, 第 3 段となるに従いエタノールのモル分率は低下した。また、蒸留缶への供給液流速が遅くなるとエタノールのモル分率は減少し、第 1 段から第 2 段, 第 3 段となるに従いその減少割合が大きくなった。これは、流量が遅くなるに伴いモデルもろみが蒸留缶に滞留する時間が長くなりエタノールと共に水も蒸留されたため、エタノールのモル分率が低下したと考えられる。他の微量成分においても留出時間によらずモル分率は一定となった。

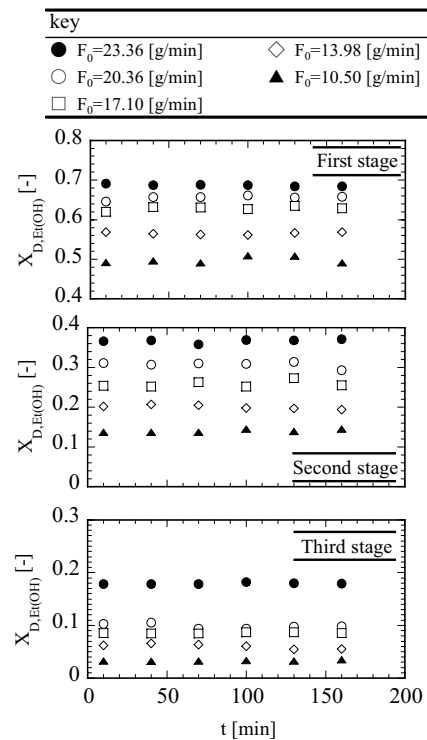


図 3 蒸留時間と留出液中のエタノールのモル分率 $X_{D, Et(OH)}$ の関係

もろみの供給速度 F_0 を 23.4 g/min または 10.5 g/min とした場合の各段の留出液中のエタノールのモル分率 $X_{D, Et(OH)}$ および微量成分のモル分率 $X_{D, i}$ を図 4 に示す。 β -フェネチルアルコール以外の微量成分の留出モル分率は供給速度を減少させた場合、水の蒸発量が増えるために留出モル分率は小さくなった。酢酸エチルは揮発度が 1 より大きく揮発されやすいため、第 1 段での留出モル分率が大きく大部分が留出され、第 2 段と第 3 段でほとんど留出されなかった。 β -フェネチルアルコールは、流速が早い場合よりも流速が遅い場合の第 2 段と第 3 段で留出濃度が高くなった。これは、 β -フェネチルアルコールの揮発度が 1 より小さく揮発されにくいため、供

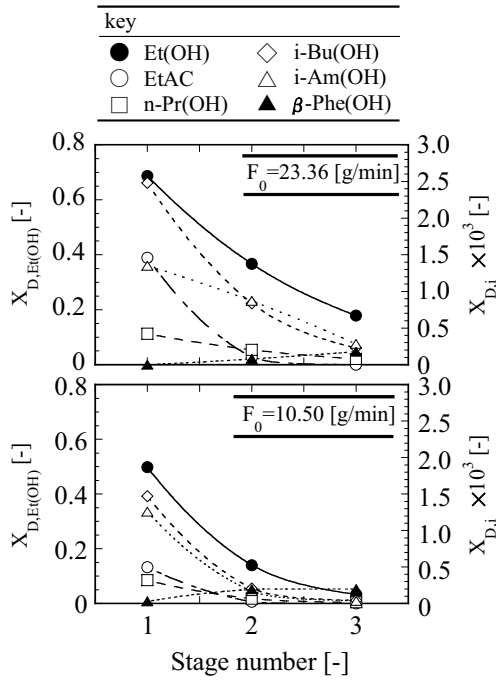


図4 $F_0=23.4$ g/min と 10.5 g/min における留出液中のエタノールのモル分率 $X_{D, \text{Et(OH)}}$ および微量成分のモル分率 $X_{D,i}$ と段数との関係

給流速が遅くエタノールの留出モル分率が低く蒸留温度が高くなる第2段と第3段で β -フェネチルアルコールが留出され易くなったためである。

蒸留缶への送液流量は、蒸留缶に供給された供給液の蒸留缶内での平均滞留時間 τ_N と次式のように関係する。

$$\tau_N = \frac{V_N}{F_N / \rho_{B,N}} \quad (1)$$

ここで V_N は蒸留缶液体積 [ml], F_N は第 N 段の抜き出し缶液の流量 [g/min], $\rho_{B,N}$ は缶出液の密度 [g/ml] である。

各段の留出液中のエタノールモル分率 $X_{D, \text{Et(OH)}}$ および β -フェネチルアルコールモル分率 $X_{D, \beta\text{-Phe(OH)}}$ と平均滞留時間 τ の関係を図5に示す。各段とも平均滞留時間が長くなるに伴いエタノールモル分率は減少した。平均滞留時間を短くすることによってエタノールより高沸点成分である水の蒸発量が減少するために、低沸点成分であるエタノールの留出モル分率が高い留出液が得られる。 β -フェネチルアルコールは留出液中のエタノールモル分率が小さい値で留出するため、平均滞留時間が長くなりエタノールモル分率が減少するのに伴って β -フェネチルアルコールの留出モル分率は増加した。

3. 2 還流比の影響

多段定常蒸留装置の第1段と第2段のみ用いて蒸留実験を行い、留出組成におよぼす還流比の影響を検討し

た。供給液量 $F_0=10.5$ g/min とし、還流比は各段とも 0.5, 1.0 または 2.0 で行った。

還流比を変化させたときの第1段および第2段のエタノールのモル分率 $X_{D, \text{Et(OH)}}$ および微量成分のモル分率 $X_{D,i}$ を図6に示す。 β -フェネチルアルコールを除くいずれの成分も留出モル分率は還流比が大きくなるに伴い増加した。これは、還流比を大きくすることにより、充填管内での精留効果が増すために、主成分であるエタノ

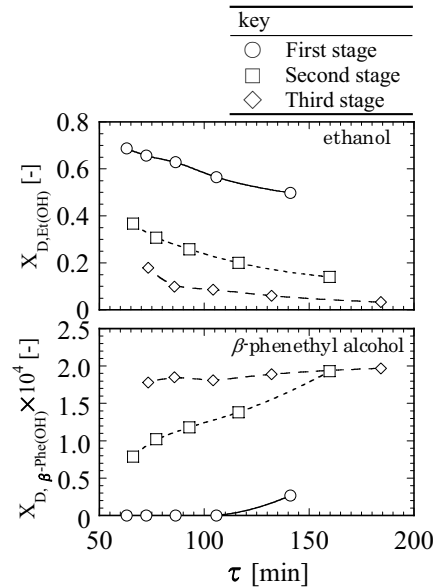


図5 各段の留出液中のエタノールモル分率 $X_{D, \text{Et(OH)}}$ および β -フェネチルアルコールモル分率 $X_{D, \beta\text{-Phe(OH)}}$ と平均滞留時間 τ の関係

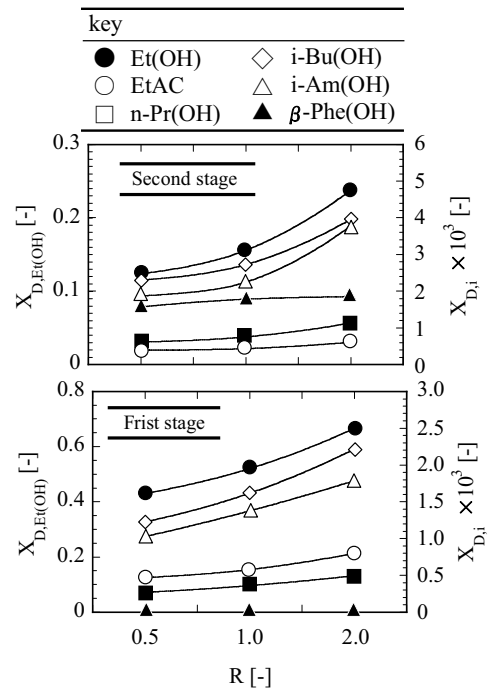


図6 第1段と第2段のエタノールのモル分率 $X_{D, \text{Et(OH)}}$ および微量成分のモル分率 $X_{D,i}$ と還流比との関係

ールより低沸点成分である水の留出モル量が減少したためである。 β -フェネチルアルコールは第1段では留出されず、第2段で流出された。また、環流比が高くなってもほぼ一定であった。これは、第2段で環流比2.0の時他の成分のモル分率の増加が大きく β -フェネチルアルコールのモル分率が相対的に低くなったためである。

これらの結果より、多段定常蒸留操作では留出時間によらず留出組成は一定であり、各蒸留段、もろみおよび缶液の送液速度および環流比によって留出組成が変化することが分かる。それぞれの蒸留段で操作条件を最適化することにより特徴のある留出液を安定して得ることが可能となる。

4. まとめ

微量成分を含むエタノール水溶液をモデル焼酎もろみとして多段定常蒸留装置によりもろみ供給速度および環流比を変化させて蒸留実験を行った。留出液の組成は蒸留操作の間一定に保たれ、その組成は、もろみ供給速度と滞留時間および環流比によって変化した。従って、多段定常蒸留の操作条件を制御することにより、焼酎もろみより一定の組成の留出液を安定して得ることができ、分割採取した特定の成分組成の留出液をブレンドすることにより新規な香味の焼酎開発が行えると期待される。

謝辞

本研究は、日本酒造組合中央会、霧島酒造株式会社、宮崎県食品開発センターおよび宮崎大学工学部物質環境化学科の共同研究で実施したものであり、研究費をいただきました日本酒造組合中央会に感謝いたします。

参考文献

- 1) 碓 醇, 幡手泰雄, 福元貴司, 榊一任: 化工論文集, **15**(5), 1031-1034 (1989)
- 2) 碓 醇, 幡手泰雄, 西野剛, 濱崎幸男: 化工論文集, **16**(4), 652-659 (1990)
- 3) 幡手泰雄, 愛甲涼子, 谷口潔, 上村芳三, 柏田雅徳, 河野恵宣, 大森俊郎, 下田雅彦: 化工論文集, **23**(3), 428-432 (1997)
- 4) 鮫島吉廣, 小峯修一: 醸協, **93**(9), 709-715 (1998)
- 5) 鮫島吉廣: 醸協, **99**(7), 495-501 (2004)
- 6) 安藤浩毅, 濱崎幸男, 谷口潔, 桑木野博信, 中野健治, 上村芳三, 幡手泰雄: 化工論文集, **22**(6), 1318-1325 (1996)
- 7) 河野恵宣, 塩盛弘一郎, 幡手泰雄, 柏田雅徳, 高橋勝南: 特開 2005-160329 (2005)