

充填塔による焼酎の回分蒸留

柏田 雅徳*・富山 幸子*・工藤 哲三*
河野 恵宣**・幡手 泰雄
(受理 平成7年5月31日)

Study on pot still distillation of shochu mash with Tower Packing

Masanori KASHIWADA, Sachiko TOMIYAMA, Tetsuzo KUDO,
Yoshinobu KAWANO and Yasuo HATATE

In order to grasp the fundamental guidelines for the application of a packed tower method to the distillation of Shochu mash, the movement of ethanol and Shochu flavor components in the model solution in the pot still distillation with a packed tower was examined.

As a result, the characteristics of ethanol and several other components, higher alcohol and higher fatty acid ethyl ester, were made clear, in respect to the distribution in the packed tower and in regard to the movement of the distillate with Tower Packing.

Especially, the difference in distillation movement was observed between ethyl linolate and ethylpalmitate.

1. はじめに

従来、焼酎蒸留には構造の簡単な単式蒸留機が使用されてきた。蒸留における一般成分の留出挙動は、アルデヒド類、エステル類、高級アルコール類は大部分が初留区分に留出し、中留、後留にいくにしたがって少なくなる。従って、焼酎の香気成分の大半が初留区分に集まっている。本格焼酎の味覚はこの多種多様な微量成分の含有量に大きく依存しているといわれている。このような微量成分を制御できる蒸留装置の研究が数多く行われている。^{1,2,3)} 甲類焼酎の製造に使われている連続式蒸留機は、蒸留塔(泡鐘塔)の精留効果により焼酎中の微量成分を効率的に制御でき、高濃度のアルコールを連続的に取り出すことができる。本格焼酎の蒸留に泡鐘塔を導入する試みとして、多段塔式回分蒸留の研究が行われている。^{4,5)}

一方、泡鐘塔と同様の精留効果のある充填塔は、泡鐘塔よりホールドアップ量が少なく、理論段数が高くて、より高い精留効果が期待できるといわれているが、

設計上の計算が複雑でデータが少ない等のことから、構造的に単純な充填塔式回分蒸留の焼酎蒸留への試みは、未だ報告されていない。

本研究報告では充填塔を本格焼酎の蒸留へ応用するための基礎的な指標を得るために、モデルモロミと焼酎モロミを用いて、充填塔式回分蒸留試験を行った結果、エタノールや微量成分の蒸留挙動に関する知見を得たので報告する。

2. 実験方法

2.1 充填塔による焼酎の回分蒸留

30リットル規模の充填塔式回分蒸留装置を図1に示す。蒸留塔は内径210mm高さ300mmの円筒を3段設置した。各段の底部に試料採取口を設け、ステンレス製の25mm×30mmラシヒリング(表1)を充填した。蒸留缶に30リットルの焼酎モデルモロミ(表2)を仕込み、還流量が200ml/minになるように蒸気量を自動調節し、常圧で間接加熱した。全還流定常状態になった時点で蒸留缶、充填塔の各段及び留出液を採取した。

* 宮崎県食品加工研究開発センター

** 宮崎大学工学部教授

表1 充填物の形状

材 質	SUS304
形 状	ラシヒリング
サ イ ズ	1インチ
空 隙 率	83%
表 面 積	1,800m ² /m ³
入 数	36個/ℓ
重 量	1,360 g/ℓ

表2 焼酎モデルモロミ組成

エ タ ノ ー ル	15 v/v%
ア セ ト アル デ ヒ ド	50 mg/ℓ
n- プ ロ パ ノ ー ル	700 〃
iso- プ タ ノ ー ル	700 〃
iso- ア ミ ル アル コ ー ル	700 〃
β- フェ ネ チ ル アル コ ー ル	500 〃
カ プ ロ ン 酸 エ チ ル	100 〃
カ プ リ ル 酸 エ チ ル	100 〃
パ ル ミ チ ン 酸 エ チ ル	100 〃
リ ノ ー ル 酸 エ チ ル	100 〃

表3 ガスクロマトグラフによる分析条件

機 種	: HP-5890, FID
カ ラ ム	: DB-WAX, 0.32mm×30m
温 度	: 55℃→215℃, He 3ml/分

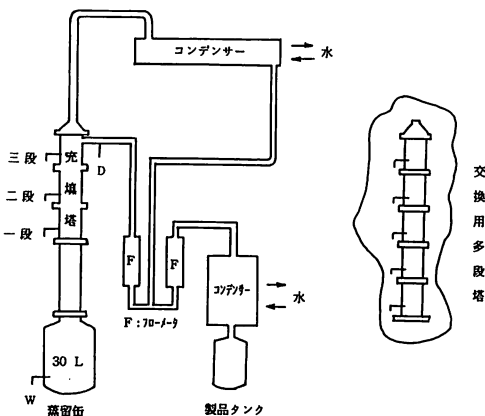


図1 充填塔式回分蒸留試験機 (30リットル)

基本的な仕様

- 装 置: ケミカルプラント(株)製 小型蒸留試験機
- 蒸 留 缶: モロミ1回仕込量30リットル
- 蒸 留 塔: 充填塔又は多段塔(泡鐘段5段付)
- 還 流 比: 常圧時0~6, 減圧時0~3
- 蒸留時間: 常圧時2~2.5時間 減圧時3~3.5時間
- 加熱方法: 0.2~1 kg/cm²・Gの飽和蒸気, 減圧, 常圧, 直接, 間接加熱切換可能
- 機器材質: 各機器, 配管共に製品接液部は, 全てSUS304製
- 機器能力: 加熱蒸気量自動制御, 還流比自動調節, 還流液温度制御, 減圧度調整可能
- 外形寸法: 横×幅×高 (2,300mm×1,300mm×4,790mm)

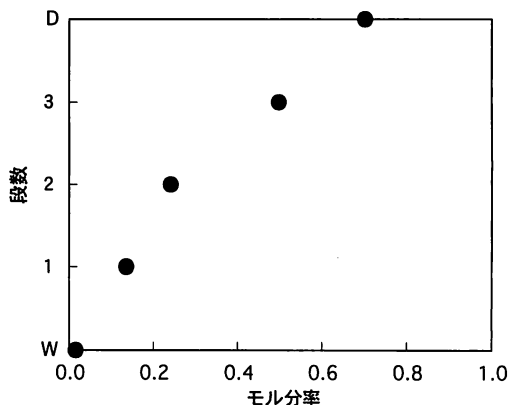
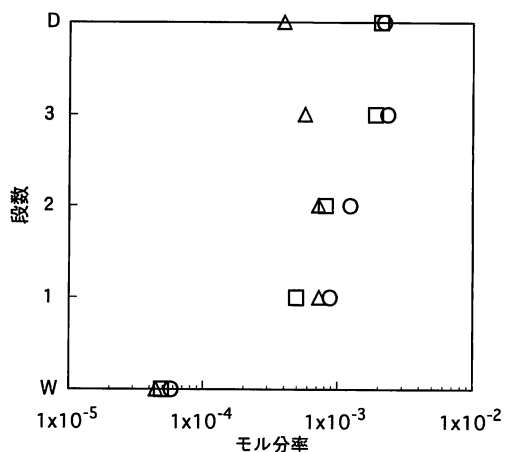
図2 モデルモロミの充填塔式回分蒸留における全還流状態の各段のエタノール
充填塔: 内径210mm, 高さ900mm

図3 モデルモロミの充填塔式回分蒸留における全還流状態の各段の微量成分

- : n-プロピルアルコール
- : iso-ブチルアルコール
- △: iso-アミルアルコール

全還流定常状態から還流比を3にセットし, 還流液量を200ml/minに保つように蒸気量を調節しながら1リットルずつ留出液を採取した。留出液中のエタノール濃度が10v/v%以下になる7分画直後に留出液をカットした。

採取した液中のエタノール, アセトアルデヒド, アルコール類及び脂肪酸エチルエステル類の分析はガスクロマトグラフ(表3)で行い, フルフラール, 揮発酸は常法により分析した。⁶⁾

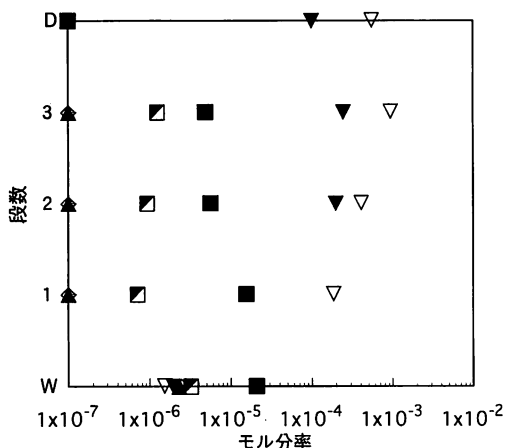


図4 モデルモロミの充填塔式回分蒸留における全還流状態の各段の微量成分

- ▽：カブロン酸エチル
- ▼：カプリル酸エチル
- ：β-フェネチルアルコール
- ◻：パルミチン酸エチル
- ◇：オレイン酸エチル
- ▲：リノール酸エチル

また、精留効果を比較するために、充填塔の代わりに210mm×300mmの泡鐘塔を5段設置した多段式回分蒸留試験を同様の蒸留条件で行った。

焼酎モデルモロミと同じ蒸留条件で米製焼酎モロミ30リットルを使用した充填塔式回分蒸留試験を行った。比較対象として多段式回分蒸留試験と充填物を取り除いた通常の単式蒸留試験を行った。

15v/v%のエタノール調整液を用いて、常圧直接加熱、減圧・間接加熱、減圧・直接加熱による充填塔式回分蒸留試験を行った。

3. 実験結果

3.1 充填塔式回分蒸留によるモデルモロミの全還流定常状態の充填塔内の濃度分布

全還流定常状態における蒸留缶(W)、充填塔の3カ所(下から1, 2, 3段)及び還流液(D)のエタノールの濃度分布を図2に示す。蒸留缶(W)のエタノールのモル分率は0.05以下であり、充填塔の上段へ一定の割合で増加していき、還流液(D)のモル分率は0.69であった。各微量成分の全還流定常状態の濃度分布を図3, 図4に示す。n-プロパノール, iso-ブタノール, iso-アミルアルコール, カブロン酸エチル及びカプリル酸エチルはエタノールとほぼ同様の濃度分布を示した。β-フェネチルアルコールや高級脂肪酸エチル類の濃度分布は逆に蒸留缶(W)で最も高く、充填塔の上

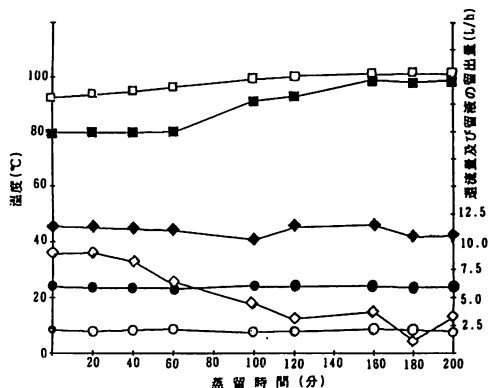


図5 充填塔式回分蒸留における蒸留経過

- ◇：還流液
- ：留出液
- ◆：還流液温度
- ：留出液温度
- ：蒸留缶温度
- ：塔頂部温度

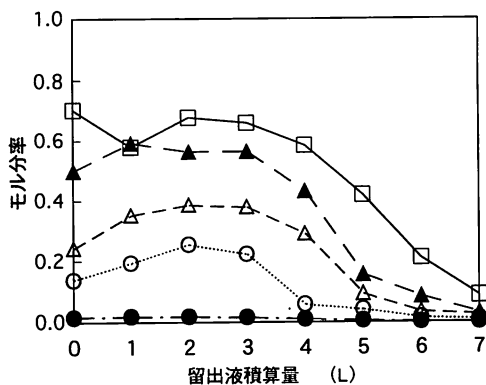


図6 モデルモロミの充填塔式回分蒸留におけるエタノールの留出挙動

- ：留出液
- ▲：充填塔上部
- △：充填塔中間部
- ：充填塔下部
- ：蒸留缶

段にいくにつれて低下していた。特に、油臭成分の原因物質といわれているリノール酸エチルは図4に示すとおり充填塔内部にはほとんど保持されておらず、パルミチン酸エチルの充填塔内部の濃度分布に差が認められた。

3.2 モデルモロミの充填塔式回分蒸留による蒸留挙動

全還流定常状態から還流比3で1リットルずつ留出液の抜き出しを開始した。この時の蒸留経過を図5に示す。登頂部の温度は留出5分画までは79.1~80.3℃

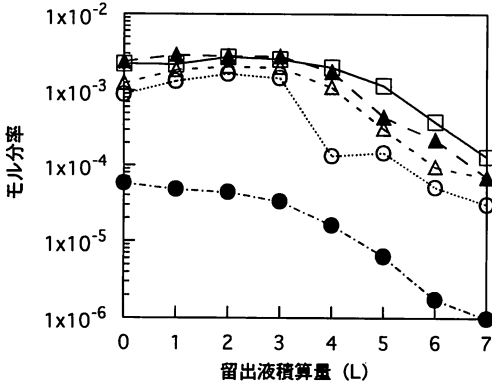


図7 モデルモロミの充填塔式回分蒸留における iso-ブタノールの留出挙動

□: 留出液 ▲: 充填塔上部 △: 充填塔中間部
○: 充填塔下部 ●: 蒸留缶

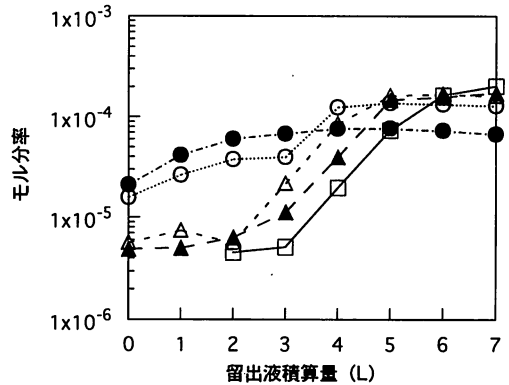


図9 モデルモロミの充填塔式回分蒸留における β-フェネチルアルコールの留出挙動

□: 留出液 ▲: 充填塔上部 △: 充填塔中間部
○: 充填塔下部 ●: 蒸留缶

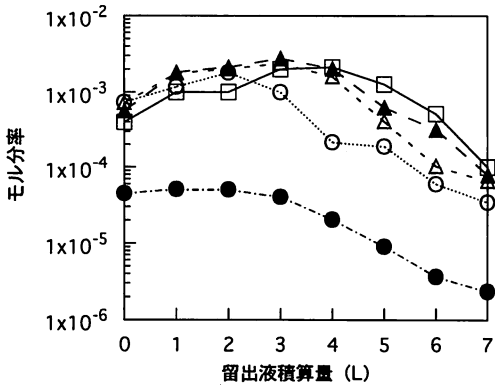


図8 モデルモロミの充填塔式回分蒸留における iso-アミルアルコールの留出挙動

□: 留出液 ▲: 充填塔上部 △: 充填塔中間部
○: 充填塔下部 ●: 蒸留缶

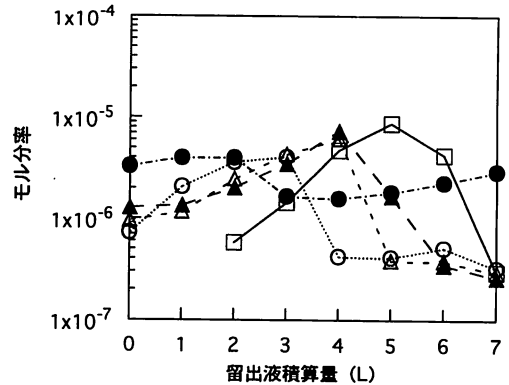


図10 モデルモロミの充填塔式回分蒸留における パルミチン酸エチルの留出挙動

□: 留出液 ▲: 充填塔上部 △: 充填塔中間部
○: 充填塔下部 ●: 蒸留缶

で推移しその後漸次上昇していった。還流液の温度は45℃に調整した。還流液量は6分画までは130~60ml/minに設定し、留出液量を40ml/min(還流比2~3)で抜き出した。充填塔におけるエタノール及び微量成分の留出挙動を図6~図12に示す。充填塔における留出液中のエタノールのモル分率は1分画から4分画では0.7~0.6である。充填塔内のエタノールの濃度分布は上部から下部になるにつれて低下しており、留出時の各段のエタノール濃度は初留域から後留域になるに

つれて一定の割合で低下していった。留出時の充填塔内部のエタノールの濃度分布から、エタノールは安定した精留を保ちながら留出していた。蒸留缶内のエタノールモル分率は留出開始時には0.02以下であり、エタノールは蒸発缶内にはほとんど残留していなかった。

充填塔におけるn-プロパノール, iso-ブタノール, iso-アミルアルコール, カブロン酸エチル及びカプリル酸エチルの留出挙動は、エタノールとほぼ同じ留出経過を示した。β-フェネチルアルコールやパルミチ

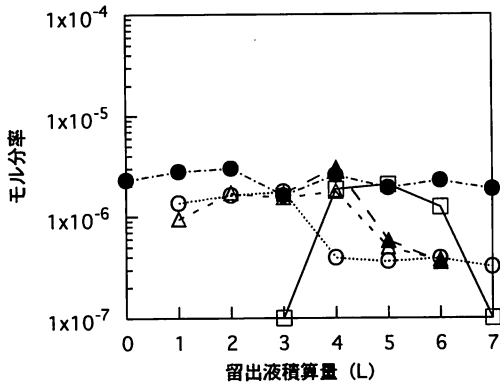


図11 モデルモロミの充填塔式回分蒸留におけるリノール酸エチルの留出挙動

□：留出液 ▲：充填塔上部 △：充填塔中間部
○：充填塔下部 ●：蒸留缶

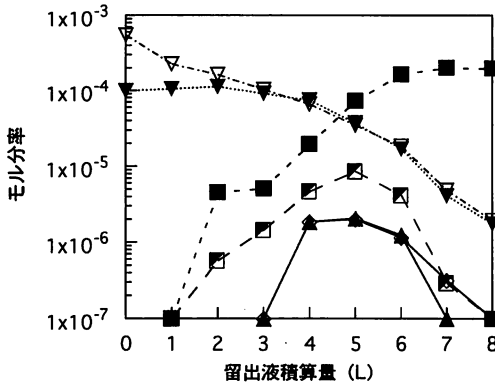
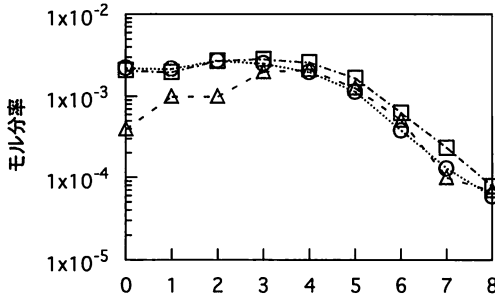


図12 モデルモロミの充填塔式回分蒸留における微量成分の留出挙動

□：n-プロピルアルコール ○：iso-ブチルアルコール
△：iso-アミルアルコール ▼：カブロン酸エチル
▲：カプリル酸エチル ■：β-フェネチルアルコール
■：パルミチン酸エチル ◇：オレイン酸エチル
▲：リノール酸エチル

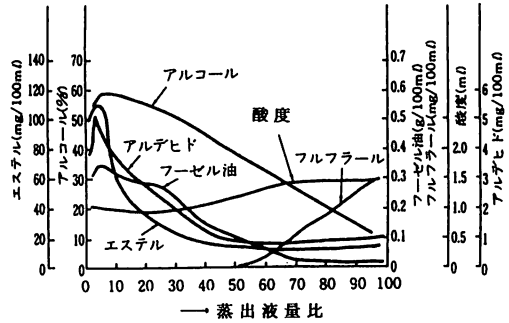


図13 単式蒸留における留出液の成分編変化

(本格焼酎製造技術, p174, (財)日本醸造協会)

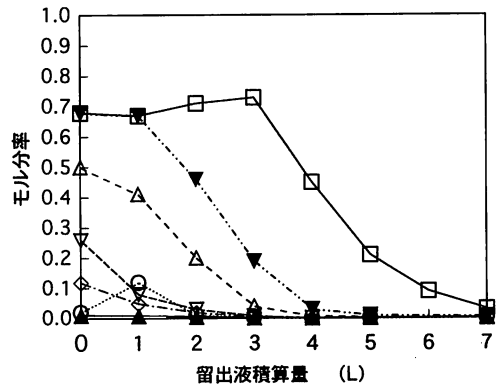


図14 モデルモロミの多段式回分蒸留におけるエタノールの留出挙動

□：留出液 ▲：5段 ▼：4段 △：3段
▼：2段 ○：1段 ●：蒸留缶

ン酸エチル、オレイン酸エチル及びリノール酸エチルは逆に初留域に少なく中留から後留に増加していった。従来の単式蒸留における各成分の留出経過は図13に示すとおりアルコール類、エステル類及びアルデヒド類は初留区分に多く、中留、後留と漸減するといわれているが、⁷⁾ この充填塔式回分蒸留機では特にエステル類の留出挙動が異なっていた。また、パルミチン酸エチルはリノール酸エチル等より早く留出し始め、より高い濃度で留出した。このことから、充填塔による不飽和脂肪酸等の微量成分の蒸留制御の可能性が示唆された。

充填塔は多段式の泡鐘段に比べて構造的に簡単であ

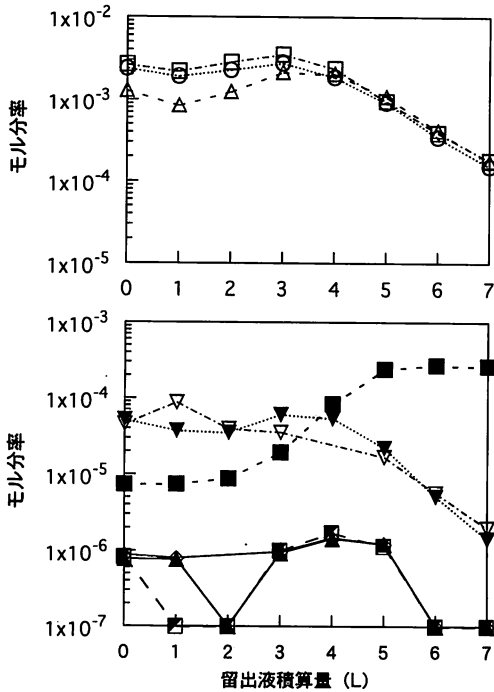


図15 モデルモロミの多段式回分蒸留における微量成分の留出挙動

- : n-プロピルアルコール ○ : iso-ブチルアルコール
- △ : iso-アミルアルコール ▽ : カブロン酸エチル
- ▼ : カプリル酸エチル ■ : β-フェネチルアルコール
- ▣ : パルミチン酸エチル ◇ : オレイン酸エチル
- ▲ : リノール酸エチル

り、安価でホールドアップ量が少ない等の利点があるといわれているが^{8),9)} 対照として実施した多段塔による各成分の流出挙動も図14, 図15に示すとおり充填塔と同様の蒸留挙動を示した。充填塔による精流効果は多段塔に比較して遜色ないものと推察される。

3.3 米製焼酎モロミの蒸留

米製焼酎モロミを使用して充填塔式回分蒸留を行った。対照として、多段式と従来式回分蒸留(充填物:なし)による蒸留を検討した。なお、蒸留条件はモデルモロミの場合と同様に行った。エタノールの留出挙動を図16に示す。充填塔式と多段塔式では1~3分画までのエタノールのモル分率が0.87~0.7の範囲内にあり、その後低下した。β-フェネチルアルコールと揮発酸の留出挙動を図17, 酢酸フェニチル及びフルフラールの留出挙動を図18に示す。β-フェネチルアルコールと揮発酸はエタノール濃度の減少とともに留出

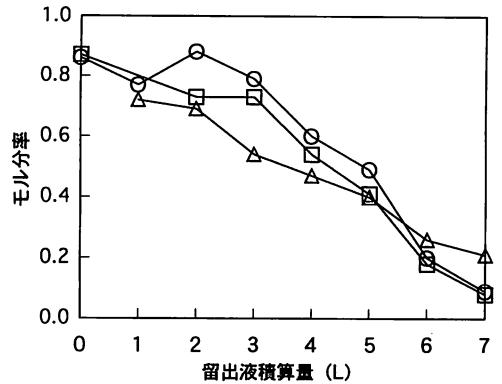


図16 米焼酎モロミの回分蒸留におけるエタノールの留出挙動

- : 充填塔式回分蒸留 ○ : 多段式回分蒸留
- △ : 従来式回分蒸留

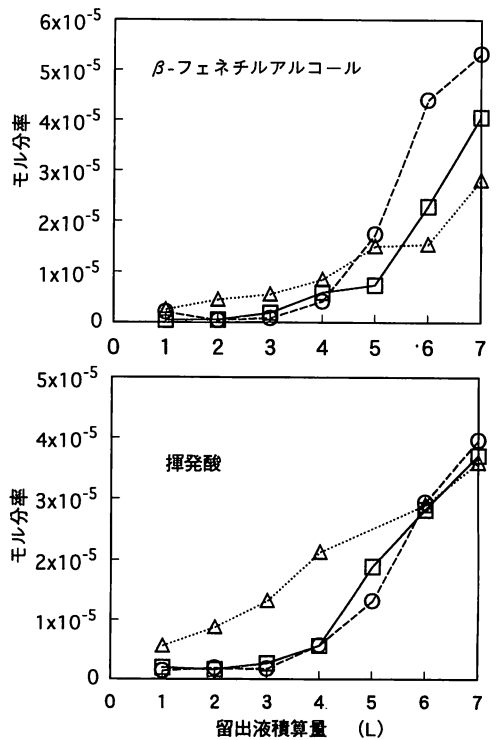


図17 β-フェネチルアルコールおよび揮発酸の留出挙動

- : 充填塔式回分蒸留 ○ : 多段式回分蒸留
- △ : 従来式回分蒸留

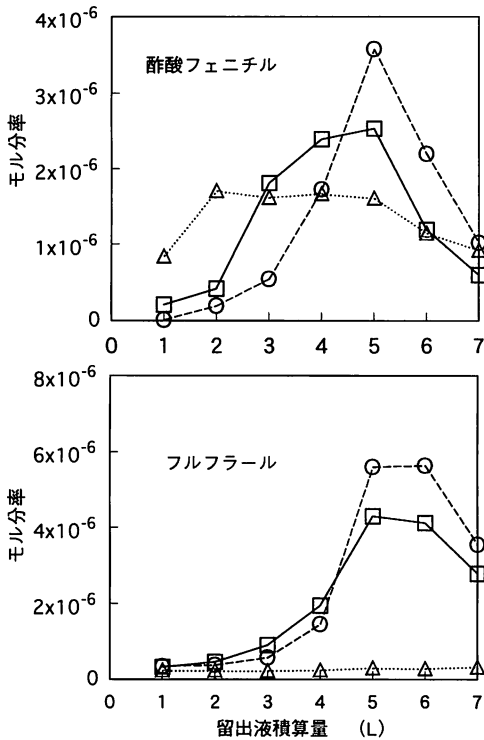


図18 酢酸フェニチルおよびフルフラールの留出挙動

□：充填塔式回分蒸留 ○：多段式回分蒸留
△：従来式回分蒸留

表4 蒸留1時間後のエタノールの濃度分布(v/v%)

蒸留条件	場所				
	蒸留缶	1段	2段	3段	還流液
常圧・直接加熱	4.9	29.3	31.3	30.1	59.1
常圧・間接加熱	7.0	38.8	58.0	32.5	59.0
減圧・直接加熱	—	28.9	45.5	32.2	59.4
減圧・間接加熱	—	25.3	47.3	15.0	51.8

量が増加し、酢酸フェニチルは5～6分画に留出のピークがあった。また、今回の常圧間接加熱蒸留での蒸留では、焦げ臭の原因物質といわれているフルフラールは蒸留後期に増加していった。これは従来法より若干蒸留時間が長くなるためであると考えられる。フルフラールの生成防止対策として、減圧、直接加熱蒸留等フルフラールの発生を抑制するような蒸留条件を検討

する必要がある。

なお、充填塔式回分蒸留機を用いて15v/v%のエタノール調整液を各蒸留条件で1時間全還流した時の蒸留塔の濃度分布を表4に示す。各条件による還流液中のエタノールの濃度は51～59v/v%であり、充填塔内部で一定の濃度分布を示した。減圧蒸留はフルフラールの生成の防止や微量成分の蒸留挙動の影響を与えると同時に蒸留廃液の発生量を削減することができる。充填塔と多段塔によるエタノールや微量成分の全還流定常状態の塔内の濃度分布及び留出挙動はモデルモロミでの蒸留試験結果と同じであった。

充填塔式回分蒸留機で蒸留した蒸留原酒についてエタノール濃度を25v/v%に調製し、官能試験を行った結果、淡麗で爽やかであるとの評価を得た。

4. まとめ

本格焼酎の蒸留塔に還流機能を有した充填塔を設置した蒸留機(30リットル規模)を用いて、15v/v%濃度のエタノール水溶液に11種類の微量成分を加えたモデルモロミについて蒸留試験を実施した結果、充填物による精留効果によりアルコール類やエステル類等の微量成分は充填塔内で一定の濃度分布を示しており、それぞれ特有の留出挙動を示した。充填塔式と多段塔式を比較検討したところ、エタノールや微量成分は類似の蒸留挙動を示した。多段塔式に比べて構造の簡単な充填塔式回分蒸留は、焼酎中の微量香味成分を選択的に蒸留する方法として有効な方法であることが認められた。特に高沸点化合物のリノール酸エチル(油臭の原因物質)等の留出制御が期待できる。

米製焼酎モロミについて充填塔で回分蒸留試験を行った蒸留酒について官能審査を行ったところ従来の単式蒸留法より淡麗で爽やかな焼酎が得られた。

本蒸留法は充填塔の材質や形状の選択、還流量の設定、常圧、減圧、直接加熱、間接加熱等多様な組み合わせの条件で蒸留することができ、今後、各種の条件での蒸留試験を行い、理論的な考察等を検討していきたい。

5. 謝 辞

最後に、本研究を遂行するにあたり、御指導、ご助言を頂いた工業技術院生命工学研究所 富塚登部長に深謝します。

文 献

- 1) 幡手泰雄, 河野恵宣, 濱村光利: 第2回化学工学会基礎講習会, 蒸留工学 (1992)
- 2) 碓醇, 幡手泰雄, 福元貴司: 化学工学論文集, 第15, 5号1031 (1989)
- 3) 碓醇, 幡手泰雄, 西野剛, 浜崎幸男: 化学工学論文集, 第16, 4号652 (1990)
- 4) 中野健治, 谷口潔等: 化学工学会第57年会講演要旨集, 127 (1992)
- 5) 安藤浩毅, 高峯和則等: 化学工学会第58年会講演要旨集, 178 (1993)
- 6) 村上英也: 第3回国税庁所定分析法注解40 (財日本醸造協会 1987)
- 7) 西谷尚道等: 本格焼酎製造技術 (財日本醸造協会 1991) 174
- 8) 原徹: 工場操作シリーズ, 蒸留 (化学工業社(株) 1982) 364
- 9) 河東準: 蒸留の理論と計算 (工学図書(株) 1975)