

氏名	さかのただあき 酒野忠明
学位(専攻分野)	博士(工学)
学位記番号	工博第1603号
学位授与の日付	平成9年3月24日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
研究科・専攻	工学研究科化学工学専攻
学位論文題目	硫黄化合物の選択的吸着分離によるコーヒーアロマの品質向上に関する研究
論文調査委員	(主査) 教授 岡崎守男 教授 東谷 公 教授 三浦孝一

### 論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、焙煎コーヒー豆の抽出工程で生じるコーヒーアロマ含有ガスから硫黄化合物を選択的に吸着分離することによって、コーヒーアロマの品質向上を図ることを目的とし、硫黄化合物選択吸着剤の選定と開発およびその吸着プロセスへの応用に関する一連の研究成果をまとめたもので、全7章からなっている。

第1章では、既往の研究を紹介し、インスタントコーヒー製造における本研究の位置付けと研究の目的及び概要を述べた。

第2章では、A型ゼオライトを用いてコーヒーアロマ含有ガス中に含まれる異臭成分の吸着除去を試みた。その結果、多数の香気成分の中からメチルメルカプタン、アセトアルデヒドが選択的に吸着されることが分かった。脱臭したアロマ含有ガスを用いて調製したコーヒーサンプルの官能試験により、異臭が低減することを確認し、メチルメルカプタンが異臭強度の指標となることを明らかにした。吸着処理後のアロマ回収率を考慮したメチルメルカプタン除去効率の観点から、ゼオライト4Aよりも5Aが優れていることが分かった。以上により、コーヒーアロマの品質向上に吸着操作が有効であることを示した。

第3章では、ゼオライトによるメチルメルカプタン分離効率の向上を図るため、コーヒーアロマ含有ガス中の代表的な6成分に対するゼオライト5Aの吸着特性を測定し、吸着熱に基づいて相互作用の大きさを評価した。また、モデル6成分に対して、ゼオライト5Aの吸着選択順位を明らかにした。この結果、吸着剤としてゼオライト5Aを使用する場合、メチルメルカプタン除去性能の改善には、吸着操作の前段にコーヒーアロマ含有ガス中の水蒸気の除去が不可欠であることが分かった。水蒸気の除去方法として部分凝縮法を提案し、多成分気液平衡計算によりその妥当性を検証した。

第4章では、メチルメルカプタン高選択性吸着剤の開発を目的として、分子ふるい炭素5Aを粉碎した後、種々の酸化処理を施しマイクロポーラスカーボンを調製した。このカーボンの細孔構造及び表面官能基に及ぼす表面酸化の影響とメチルメルカプタン吸着特性を検討したところ、酸化により細孔容積が増

加し、また表面酸素官能基の増加によりメチルメルカプタンの吸着量が増加することが分かった。調製した吸着剤を用いて、メチルメルカプタンの吸着に及ぼす共存成分の影響を検討した結果、メチルメルカプタン吸着量がアセトアルデヒド共存下で単成分系よりも増大するという特異な現象が認められ、吸着量増大効果と名付けた。この吸着量増大効果はアセトアルデヒド濃度と表面酸素官能基量に依存した。吸着剤のキャラクタリゼーションから、吸着量増大効果はマイクロポアフィリングの促進によることを明らかにした。

第5章では、吸着量増大効果の発現条件に関与する吸着剤の特性と吸着質の化学的性質を明らかにすることを目的として、種々の吸着剤、吸着質について幅広く検討し、吸着量増大の原因となるマイクロポアフィリング促進とその吸着状態について考察した。その結果、(1)吸着量増大効果を発現する吸着剤は表面酸素官能基としてフェノール性水酸基とカルボニル基の両方を持ち、主たる吸着の場となるマイクロ孔を有する必要がある。(2)吸着量が増大する吸着質はカーボン表面のフェノール性水酸基あるいはカルボニル基に化学吸着することが必要である。(3)マイクロポーラスカーボン表面のフェノール性水酸基に化学吸着する吸着質とカルボニル基に化学吸着する吸着質がマイクロ孔内で共存する場合に吸着量増大効果が発現する。以上の点を明らかにした。

第6章では、ゼオライト5Aおよび酸化処理したマイクロポーラスカーボンを用いて、水、メチルメルカプタン、アセトアルデヒド、2,3-ブタジオンを含むモデルガスからのメチルメルカプタンの吸着選択性に及ぼす表面酸化の影響を評価した。その結果、表面酸素官能基量の増加によって、メチルメルカプタンの吸着選択性が向上することが示された。さらに、実際のコーヒーアロマ含有ガスからのメチルメルカプタンの分離を試みた結果、酸化処理カーボンは、実際のコーヒーアロマ含有ガスからのメチルメルカプタンの選択的除去に対して高い分離特性を示し、実用化の可能性が高いことが分かった。

第7章は総括であり、本論文の成果を要約したものである。

## 論文審査の結果の要旨

本論文は、コーヒーアロマの品質向上を目的とし、アロマ異臭の原因となる硫黄化合物の選択的吸着除去に関する一連の基礎的並びに応用的研究成果をまとめたものである。得られた主な成果は次の通りである。

1. 吸着剤としてA型ゼオライトを用いれば、実際のコーヒーアロマ含有ガスからメチルメルカプタン、アセトアルデヒドを選択的に除去でき、官能試験により異臭が低減することを見いだした。メチルメルカプタンが異臭強度の指標となり、分離性能の点でゼオライト4Aより5Aが適していることを明らかにした。

2. ゼオライトによるメチルメルカプタン吸着分離の高効率化を図るため、コーヒーアロマ含有ガス中の代表的な6成分に対するゼオライト5Aの吸着選択性を検討し、水蒸気がゼオライトの吸着性能を阻害することを見いだした。部分凝縮によりガス中の水蒸気を除去した後、メチルメルカプタンを吸着するプロセスが分離効率改善に有効であることを指摘した。

3. ゼオライトに代わるメチルメルカプタン高選択性カーボン吸着剤の開発を目的として、分子ふるい

炭素に種々の酸化処理を施したところ、メチルメルカプタン吸着量がアセトアルデヒド共存下で単成分系よりも顕著に増大する特異な現象を初めて見だし、吸着量増大効果と名付けた。さらに、いくつかの吸着剤と吸着質の組み合わせについて同効果が発現することを明らかにし、その機構を推論した。

4. 本研究で開発したカーボン吸着剤を用いることにより、実際のコーヒーアロマ含有ガスからメチルメルカプタンを選択的に除去でき、工業的プロセスへの導入の可能性が大きいと結論した。

以上要するに、本論文はコーヒーアロマ含有ガスからの硫黄化合物の高選択性吸着剤の開発とその吸着プロセスへの応用に関して実験的検討を加えたもので、新しい吸着現象の発見など学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は、京都大学博士（工学）の学位論文として、価値あるものと認める。また、平成9年1月23日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。