

19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 800 681**

51 Int. Cl.:

A23L 2/06 (2006.01)
A23G 3/36 (2006.01)
A23G 4/06 (2006.01)
A23G 9/32 (2006.01)
C12G 3/04 (2009.01)
C12G 3/06 (2006.01)
C12H 6/02 (2009.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

- 86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **29.09.2015 PCT/JP2015/077431**
- 87 Fecha y número de publicación internacional: **07.04.2016 WO16052462**
- 96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **29.09.2015 E 15847297 (7)**
- 97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **10.06.2020 EP 3202883**

54 Título: **Método de fabricación de solución acuosa de etanol**

30 Prioridad:

30.09.2014 JP 2014202073

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:

04.01.2021

73 Titular/es:

**SUNTORY HOLDINGS LIMITED (100.0%)
1-40 Dojimahama 2-chome Kita-ku
Osaka-shi, Osaka 530-8203, JP**

72 Inventor/es:

**NAKAJIMA, MIHOKO y
TORII, KAZUYUKI**

74 Agente/Representante:

UNGRÍA LÓPEZ, Javier

ES 2 800 681 T3

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín Europeo de Patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre Concesión de Patentes Europeas).

DESCRIPCIÓN

Método de fabricación de solución acuosa de etanol

5 Campo técnico

La presente invención se refiere a un método para producir soluciones acuosas de etanol que tienen el aroma de materias primas biológicas.

10 Técnica antecedente

Se conocen métodos por los cuales los aceites esenciales o las soluciones acuosas de alcohol que contienen componentes aromáticos, tales como frutas o pieles de frutas, se producen por destilación. Por ejemplo, el documento de patente 1 desvela un método para producir bebidas alcohólicas destiladas caracterizado por que las pieles de frutas de cítricos o manzanas en su forma cruda se sumergen en alcohol y se destilan a presión reducida. El documento de patente 2 desvela que la producción eficiente de aceites esenciales o agua floral es posible tratando los posos de zumo de cítricos exprimidos con enzimas tales como celulasa o pectinasa y, a continuación, realizando destilación a presión reducida.

20 En cuanto a la destilación, el documento de patente 3 desvela un método para realizar el mismo sometiendo una parte del destilado líquido resultante a reflujo.

El documento JP S61 35778 A desvela un método para producir una solución acuosa de etanol que tiene un aroma de ciruela cruda que comprende las etapas de una destilación de ciruela que contiene una solución acuosa de etanol realizada con etanol al 35 % en volumen y añadiendo etanol al destilado para ajustar el sabor.

El documento EP 2 517 575 A1 desvela un proceso de destilación de material vegetal de eneldo con solución de agua/etanol para obtener un extracto de eneldo etanólico de etanol al 45-55 % y, además, una bebida alcohólica que contiene dicho extracto de eneldo.

30 El documento US 2 865 756 A desvela un proceso para producir un sabor a fruta sin azúcar que consiste esencialmente en destilar la esencia aromática de una fruta.

El documento DE 10 2004 043972 A1 desvela un proceso para producir un licor con sabor a avellana que comprende una destilación de una suspensión de avellanas y recoger y diluir el destilado para ajustar el contenido de alcohol.

Sin embargo, ninguno de los documentos anteriores desvela un método para producir una solución acuosa de etanol en el que el segundo etanol y la segunda agua se suministran adicionalmente durante la destilación.

40

Lista de citas**Bibliografía de patentes**

45 Documento de Patente 1: Patente japonesa N.º 4302871

Documento de Patente 2: JP 2004-18737 A

50 Documento de Patente 3: Patente japonesa N.º 2829407

Sumario de la invención**Problema técnico**

55 En el caso de destilar una solución acuosa de etanol que contiene los componentes aromáticos de una materia prima biológica, los componentes de bajo punto de ebullición y estimulantes que tienden a destilarse cuando el vapor tiene un alto volumen de alcohol son los primeros en destilarse, a continuación, se destilan los componentes aromáticos útiles y, en la etapa posterior de destilación, se generan olores no deseados, tales como un olor concentrado o un olor a quemado. Por tanto, se requiere un método que no solo requiera una remodelación mínima de las instalaciones, sino que también se pueda operar simplemente para adquirir los componentes aromáticos útiles tanto como sea posible de la materia prima biológica de manera selectiva, evitando la generación de dichos olores no deseados.

60

Solución del problema

65

Como resultado de estudios intensivos, los presentes inventores llegaron a la idea de que cuando se destila una

mezcla de una materia prima biológica, etanol y agua, y se recupera el destilado líquido separado en cantidades específicas (llamadas fracciones), la evaluación sensorial podría variar de una fracción a otra; según esta suposición, los presentes inventores analizaron su alcohol por volumen, así como los componentes aromáticos útiles y los componentes de olores no deseados, y realizaron una evaluación sensorial de esos componentes. Como resultado, los presentes inventores han descubierto que si se suministran etanol y agua adicionalmente a la mezcla de interés, de manera que la concentración de etanol en el destilado líquido se encuentre dentro de un intervalo específico en el momento de su producción, se pueden adquirir más de los componentes aromáticos deseados sin aumentar la transferencia al destilado líquido de componentes altamente estimulantes u olores no deseados.

10 La presente invención se refiere a lo siguiente.

1. Un método para producir una solución acuosa de etanol que tiene un aroma de una materia prima biológica, que comprende las etapas de:

15 someter una mezcla de la materia prima biológica, primer etanol y primera agua a destilación, y añadir el segundo etanol y la segunda agua a la mezcla durante la destilación, en el que después de dicha adición, la concentración de etanol del destilado líquido de la destilación en el momento de su producción es del 10 al 50 %, y
20 en el que la adición del segundo etanol y la segunda agua se inicia después de que la concentración de etanol del destilado líquido se haya reducido al intervalo de 10 a 50 %.

2. El método de acuerdo con la afirmación 1, en el que la adición del segundo etanol y la segunda agua se inicia después de que el destilado líquido se produzca en un volumen que es de 0,10 a 0,75 veces el volumen total del primer etanol y la primera agua.

25 3. El método de acuerdo con la afirmación 1 o 2, en el que el segundo etanol y la segunda agua se añaden en una relación en volumen de 5:95 a 50:50.

4. El método de acuerdo con una cualquiera de las afirmaciones 1 a 3, en el que el volumen total del segundo etanol y la segunda agua es de 0,01 a 3 veces el volumen total del primer etanol y la primera agua.

30 5. El método de acuerdo con una cualquiera de las afirmaciones 1 a 4, en el que la destilación es destilación atmosférica.

6. El método de acuerdo con una cualquiera de las afirmaciones 1 a 5, en el que la materia prima biológica es al menos un miembro seleccionado entre frutas, pieles de frutas y hierbas.

7. El método de acuerdo con una cualquiera de las afirmaciones 1 a 6, en el que la materia prima biológica es al menos un miembro seleccionado de entre cítricos y pieles de cítricos.

35

Efectos ventajosos de la invención

La presente invención permite que las materias primas biológicas se destilen de tal manera que se adquieran más componentes aromáticos mientras se evita la transferencia de olores no deseados al destilado líquido. Se cree que tales efectos ventajosos no se limitan al caso del uso de materias primas biológicas, etanol y agua en proceso de destilación. La presente invención se basa en la siguiente idea: en el caso de realizar la destilación en un sistema de tres componentes que consiste en una materia prima que contiene el componente útil A, más el disolvente B y el disolvente C, específicamente en el caso en el que una mezcla de la materia prima que contiene el componente útil A, más los disolventes B y C se someten a destilación, el porcentaje de recuperación de A puede mejorarse convenientemente manteniendo las proporciones de B y C en la mezcla a valores tales que A se evapore fácilmente. En los ejemplos, A es linalool y similares que están contenidos en *Citrus junos*, y B y C son agua y etanol; sin embargo, debe tenerse en cuenta que la materia prima que contiene un componente efectivo no se limita a una materia prima biológica, tal como *Citrus junos*, y que los disolventes también pueden ser distintos de etanol y agua.

50 Breve descripción de los dibujos

La figura 1 es un gráfico que muestra la relación entre la concentración de etanol de un destilado líquido y el número de fracción; el eje vertical representa la concentración de etanol (%) y el eje horizontal representa el número de fracción; ■ representa datos para el método de la presente invención y ♦ representa datos para un experimento de control.

55

La figura 2 es un gráfico que muestra las concentraciones (ppm) de limoneno y linalol en cada una de las fracciones obtenidas en el experimento de control; el eje vertical representa la concentración y el eje horizontal representa el número de fracción; ♦ representa la concentración de limoneno y ■ representa un valor numérico obtenido al multiplicar la concentración de linalol por un factor de 10.

60

La figura 3 es un gráfico que muestra las concentraciones (ppm) de limoneno y linalol en cada una de las fracciones obtenidas por el método de la presente invención; el eje vertical representa la concentración y el eje horizontal representa el número de fracción; ♦ representa la concentración de limoneno y ■ representa un valor numérico obtenido al multiplicar la concentración de linalol por un factor de 10.

65 Descripción de las realizaciones

El método de producción de la presente invención y la solución acuosa de etanol obtenida mediante el mismo se describen a continuación.

(Solución acuosa de etanol)

5 La expresión "solución acuosa de etanol" como se usa en la presente invención significa una solución acuosa que contiene etanol. Además de etanol y agua, esta solución acuosa puede contener otros componentes, tales como los componentes aromáticos de las materias primas biológicas. Se incluyen dentro del alcance de la solución acuosa de etanol las bebidas alcohólicas que contienen etanol. Dichas bebidas alcohólicas pueden incluir whisky, brandy, *shochu*, ginebra, vodka, alcoholes neutros, bebidas alcohólicas fermentadas, etc.

(Materias primas)

15 En el método de producción de la presente invención, las materias primas biológicas, el etanol y el agua se utilizan como materias primas.

Las materias primas biológicas que se van a utilizar en la presente invención no están particularmente limitadas y pueden ser materias primas vegetales o materias primas animales. Las materias primas vegetales de ejemplo son frutas, pieles de frutas, hierbas, raíces de hierbas/ cortezas de los árboles (por ejemplo, perilla, hojas de cerezo, etc.), tubérculos, hortalizas, especias y materias primas para tostar, tales como café. Las materias primas vegetales preferidas son las frutas, pieles de frutas y hierbas. Las materias primas animales de ejemplo son aves, ganado bovino, cerdos y ovejas. Estos pueden usarse independientemente o dos o más tipos pueden usarse en combinación. El estado de las materias primas biológicas no está restringido y pueden estar en cualquiera de los estados congelados, refrigerados o secos. El contenido de humedad de las materias primas biológicas no está limitado tampoco.

Las frutas y las pieles de frutas que se usarán en la presente invención no están particularmente limitadas y los ejemplos incluyen: frutas, tales como cítricos (naranja, mandarina naranja, pomelo, limón, *Citrus junos*, cal, etc.), manzanas, las uvas, muscat, cereza, melón, sandía, cassis, melocotón, frutas tropicales (piña, guayaba, plátano, mango, acerola, papaya, fruta de la pasión, etc.) y otras frutas [*ume*, *nashi*, pera, albaricoque, ciruela, bayas (incluyendo fresa, enebro, arándano rojo, arándano, frambuesa, etc.), kiwi, etc.]; y las pieles de esas frutas. Estos pueden usarse independientemente o dos o más tipos pueden usarse en combinación. En la presente invención, preferentemente se usan cítricos y/o las pieles de cítricos. Dado que los componentes aromáticos de las frutas son principalmente abundantes en las pieles y la pulpa en sus proximidades, es preferente usar pieles de frutas como materia prima de partida. Las pieles de frutas pueden usarse solas o, como alternativa, pueden usarse junto con frutas o la pulpa de las frutas.

Las hierbas que se utilizarán en la presente invención no están particularmente limitadas siempre que se las conozca como hierbas y los ejemplos incluyen perilla, pimienta japonesa, té (nombre científico: *Camellia sinensis* (L.) *Kuntze*), canela, cilantro, etc. Estos pueden usarse independientemente o dos o más tipos pueden usarse en combinación.

Estas materias primas biológicas pueden procesarse preliminarmente antes de la destilación. Por ejemplo, las materias primas biológicas pueden someterse a destilación después de secarse; como alternativa, se pueden usar en estado bruto sin secarlos. Las materias primas biológicas se usan, preferentemente en su estado bruto. Si se desea, las materias primas biológicas pueden triturarse o congelarse antes de la destilación. Es más, el producto congelado puede molerse en partículas. Como alternativa, los sedimentos que se forman cuando se exprime el zumo de las materias primas biológicas también se pueden usar como materia prima. En la presente invención, dos o más de esas operaciones de procesamiento pueden realizarse en combinación.

El primer etanol y la primera agua se utilizan principalmente al comienzo de la destilación. Estos pueden mezclarse por separado con la materia prima biológica o, como alternativa, se pueden mezclar preliminarmente antes de mezclarlos con la materia prima biológica. Por ejemplo, el primer etanol y la primera agua pueden estar en forma de una solución acuosa de etanol. En la presente invención, las proporciones del primer etanol y la primera agua no están limitadas siempre que la concentración de etanol del destilado líquido que se produce después de la etapa de adición se encuentre dentro de un intervalo especificado. Sin embargo, la relación en volumen entre dicho etanol y el agua es, preferentemente de 5:95 a 99:1, más preferentemente de 5:95 a 80:20, incluso más preferentemente de 5:95 a 50:50, aún más preferentemente de 10:90 a 40:60, y, lo más preferentemente, de 10:90 a 30:70. En este caso cabe subrayar que en la presente invención, siempre y cuando la mezcla de la materia prima biológica, el primer etanol y la primera agua se someta a destilación, dicha mezcla no tiene que contener todos estos componentes desde el inicio de la destilación (el inicio de la generación de un destilado líquido). El etanol y/o el agua pueden, por ejemplo, añadirse durante la destilación. Incluso en el caso en el que las proporciones del primer etanol y la primera agua se limiten a estar dentro de cualquiera de los intervalos numéricos establecidos anteriormente, es suficiente que tales proporciones se encuentren dentro de dichos intervalos numéricos durante al menos una parte, por ejemplo un 50 % o más, un 60 % o más, un 70 % o más, un 80 % o más, un 90 % o más o un 95 % o más, del período desde el inicio de la destilación hasta el inicio de la etapa de suministrar adicionalmente etanol y agua.

El segundo etanol y la segunda agua de interés pueden añadirse por separado al sistema de destilación, o, como alternativa, primero se pueden mezclar y luego añadir al sistema de destilación. En un ejemplo, el segundo etanol y la segunda agua pueden estar en forma de una solución acuosa de etanol. En un ejemplo adicional, se puede añadir una mezcla líquida de etanol y agua (por ejemplo, solución acuosa de etanol) junto con agua y/o etanol. En el caso en el que se deban añadir etanol y agua y, opcionalmente, una mezcla líquida de los mismos por separado, se pueden añadir a tiempos diferentes. Sin embargo, los tiempos de adición, preferentemente, no están separados por intervalos demasiado largos. Preferentemente, se añaden simultáneamente. El segundo etanol y la segunda agua se añaden, preferentemente, en una relación en volumen de 5:95 a 50:50, más preferentemente de 10:90 a 50:50, incluso más preferentemente de 20:80 a 50:50 y, lo más preferentemente, de 30:70 a 50:50.

La concentración de etanol de la solución acuosa de etanol obtenida como resultado de la destilación es, preferentemente, del 10 al 80 %, más preferentemente de 20-70 %, e incluso más preferentemente del 20-60 %.

La concentración de etanol a que se hace referencia en el presente documento significa % en v/v y puede medirse por cualquier método conocido, por ejemplo con un densitómetro vibratorio. Una forma específica de determinación es la siguiente: la solución acuosa de etanol se filtra opcionalmente o se libera de dióxido de carbono gaseoso por sonicación, para preparar una muestra; a continuación, la muestra se destila a fuego directo y se mide la densidad del destilado resultante a 15 °C, que se convierte en un valor correspondiente de contenido de alcohol de acuerdo con la "Tabla 2: Tablas de conversión para el contenido de alcohol relativo a la densidad (15 °C) y la densidad específica (15/15 °C)", un anexo a los Métodos Oficiales de Análisis de la Agencia Tributaria Nacional (Heisei 19 Instrucciones de la Agencia Tributaria Nacional, volumen 6, revisado el 22 de junio de 2007). La relación en volumen del primer etanol, la primera agua, el segundo etanol y la segunda agua se pueden determinar midiendo sus respectivos volúmenes si aún no se han mezclado. Pero una vez que se mezclan, bastará medir la concentración de etanol de la mezcla líquida. El método para este fin se ha descrito anteriormente.

(Destilación)

Para empezar, la materia prima biológica, el primer etanol y la primera solución acuosa se mezclan. Esta etapa de mezcla se puede realizar dentro de un recipiente que se va a calentar durante la destilación (por ejemplo, en reposo); como alternativa, parte o la totalidad de los materiales de partida pueden mezclarse y la mezcla resultante puede cargarse en el recipiente. La relación a la cual la materia prima biológica, el primer etanol y la primera mezcla de agua no están particularmente limitados, pero, en un ejemplo, la materia prima biológica puede usarse en 0,5-50 % (p/v), 10-50 % (p/v), o 20-30 % (p/v) de la cantidad total del primer etanol y la primera agua. Además de la materia prima biológica, etanol y agua, la mezcla obtenida mediante la etapa de mezcla puede contener otros componentes siempre que no afecten negativamente a los efectos ventajosos de la presente invención. Por ejemplo, para suministrar etanol y agua, se puede usar una solución acuosa de etanol y esta puede ser una bebida alcohólica. Si se desea, el puré fermentado también se puede usar como bebida alcohólica.

Posteriormente, dicha mezcla se calienta para comenzar la destilación. La destilación se puede realizar a presión reducida o se puede realizar a presión atmosférica (sin ningún procesamiento para reducir o aumentar la presión). Preferentemente, la destilación se realiza calentando a presión atmosférica. La presión para realizar la destilación es, típicamente, de 95 kPa a 106 kPa.

El método de la presente invención se realiza típicamente usando un alambique y también puede llevarse a cabo con una torre de bandeja instalada en la parte superior del alambique.

La mezcla de interés se calienta para generar vapor y usando un enfriador, el vapor se condensa para producir un destilado líquido. Posteriormente, mientras continúa la destilación, el segundo etanol y la segunda agua se añaden a la mezcla. Después de la adición, la concentración de etanol del destilado líquido a medida que se produce es del 10 al 50 %, preferentemente del 20 al 50 %, más preferentemente del 30 al 50 % y, lo más preferentemente, del 30 al 40 %. La concentración de etanol del destilado líquido puede encontrarse temporalmente dentro de los intervalos numéricos establecidos, pero, preferentemente, se encuentra dentro de esos intervalos numéricos durante el período más largo posible. En un ejemplo, el destilado líquido que tiene la concentración de etanol dentro de los intervalos numéricos establecidos se produce en una cantidad que es, preferentemente, de 0,01 a 3 veces, más preferentemente de 0,2 a 0,6 veces, incluso más preferentemente de 1 a 0,6 veces el volumen total del primer etanol y la primera agua.

La concentración de etanol del destilado líquido significa la concentración de etanol que tiene el destilado líquido a medida que se produce, y esto es variable dependiendo del momento de su producción. Esta concentración no cambia mucho incluso si transcurre un cierto período de tiempo después de la producción del destilado líquido, por lo que la concentración en el momento de su producción puede estimarse incluso realizando una medición después del lapso de un cierto período de tiempo, en lugar de inmediatamente después de la producción. En un ejemplo, el destilado líquido se divide en cantidades relativamente pequeñas de fracciones y se mide la concentración de etanol de cada fracción, con lo cual se puede determinar la concentración de etanol que tenía el destilado líquido cuando se produjo, o un valor muy cercano a ella. Si, por otro lado, el método de determinación no es apropiado, por ejemplo,

en el caso en el que el destilado líquido se divide en cantidades relativamente grandes de fracciones y se mide la concentración de etanol de cada fracción o en el caso en que se realiza la medición de la concentración de etanol después de combinar una pluralidad de fracciones que tienen diferentes concentraciones de etanol, a veces no se obtiene la concentración exacta de etanol del destilado líquido en el momento de su producción.

5 En la presente invención, el segundo etanol y la segunda agua se "suministran adicionalmente". Esto significa añadir etanol fresco y agua. En otras palabras, dicho suministro adicional no significa devolver el destilado líquido a la mezcla mencionada anteriormente. Por tanto, el etanol y el agua que se van a suministrar adicionalmente son diferentes del destilado líquido obtenido durante la destilación. Sin embargo, siempre que se obtengan los efectos
10 ventajosos de la presente invención, el alcance de la presente invención abarca el suministro adicional de etanol y agua combinados, combinado con el retorno del destilado líquido a la mezcla mencionada anteriormente.

El suministro adicional del segundo etanol y la segunda agua se inicia cuando la concentración de etanol de dicho destilado líquido se ha reducido al intervalo del 10 al 50 %. La concentración de etanol de dicho destilado líquido en el momento en que se inicia el suministro adicional es, preferentemente, del 20 al 50 %, más preferentemente del 30 al 50 %.

Como una condición alternativa o adicional, el suministro adicional del segundo etanol y la segunda agua puede iniciarse después de producir el destilado líquido en un volumen que es de 0,10 a 0,75 veces el volumen total del primer etanol y la primera agua. El peso del destilado líquido que se ha producido al comienzo del suministro adicional es, preferentemente, de 0,10 a 0,50 veces, más preferentemente de 0,10 a 0,30 veces el volumen total del primer etanol y la primera agua.

El volumen total del segundo etanol y la segunda agua a suministrar adicionalmente es, preferentemente, de 0,01 a 3 veces, más preferentemente de 0,2 a 0,6 veces el volumen total del primer etanol y la primera agua.

El destilado líquido resultante se puede usar en alimentos o bebidas. Por tanto, todas las fracciones del destilado líquido obtenido pueden usarse en masa; como alternativa, las fracciones que tienen un olor indeseable pueden excluirse para que solo se recojan las fracciones deseables para su uso posterior. Con este fin, se pueden recoger solo las fracciones que se obtuvieron cuando la concentración de etanol de dicho destilado líquido en el momento de su producción fue del 10 al 50 %, preferentemente del 20 al 50 %, más preferentemente del 30 al 50 % y, lo más preferentemente, del 30 al 40 %. Dependiendo del caso, se pueden usar las fracciones que se obtuvieron antes de que la concentración de etanol de dicho destilado líquido en el momento de su producción cayera dentro de dichos intervalos.

35 (Uso de la solución acuosa de etanol)

La solución acuosa de etanol como el destilado líquido resultante puede beberse como tal o después de diluirse con agua o etanol. En ese caso, un componente adicional, tal como azúcar, se puede añadir azúcar líquido o acidulante dependiendo de la necesidad. Como alternativa, dicha solución acuosa de etanol también se puede añadir a bebidas o alimentos. Los ejemplos de tales bebidas o alimentos incluyen: bebidas, incluidas bebidas alcohólicas, tales como las bebidas a base de *shochu*, así como bebidas gaseosas, bebidas de frutas y té; y alimentos, tales como helado, pasteles, caramelos, goma de mascar, productos de confitería, panes, etc. No hay limitaciones particulares en la cantidad en la que se añade dicha solución acuosa de etanol y su cantidad está determinada por la extensión y
45 preferencia del aroma a impartir.

(Intervalos numéricos)

Con fines de claridad, cabe señalar que siempre que un intervalo numérico se define en el presente documento por sus límites inferior y superior y se expresa como "desde el límite inferior al límite superior". se incluyen los límites inferior y superior. Por ejemplo, el intervalo expresado como "de 1 a 2" incluye 1 y 2.

Ejemplos

55 En las siguientes páginas, la presente invención se describirá con referencia a los ejemplos, pero no está limitada por estos ejemplos.

(Ejemplo 1)

60 Usando las pieles de *Citrus junos*, se realizó destilación atmosférica. Se adoptaron dos enfoques, el método de la presente invención en el que se suministraron adicionalmente etanol y agua, y un experimento de control que no implica dicho suministro adicional. Aparatos tales como un alambique, una torre de refrigeración y un recipiente para recuperar un destilado líquido eran idénticos a los utilizados de forma habitual.

65 En cada una de la presente invención y el experimento de control, como materia prima se usó una mezcla de 110 g de las pieles de *Citrus junos* y 600 ml de un alcohol neutro (que contiene 15 % de etanol). Las pieles de *Citrus junos*

se cargaron congeladas en el alambique. Posteriormente, el alambique se calentó para comenzar la destilación.

En el experimento de control, se adquirió un destilado líquido en porciones de 30 ml para obtener un total de 6 fracciones. Los destilados líquidos obtenidos posteriormente se descartaron porque sus concentraciones de etanol eran inferiores al 10 % y tenían un olor excesivo a concentrado o a quemado.

En el método de la presente invención, asimismo, se adquirió un destilado líquido en porciones de 30 ml, dando un total de 16 fracciones. Los destilados líquidos obtenidos posteriormente se descartaron porque sus concentraciones de etanol eran inferiores al 10 % y tenían un olor excesivo a concentrado o a quemado. El suministro adicional de etanol y agua se inició durante la adquisición de la Fracción 5 y finalizó después de la adquisición de la Fracción 12. El destilado líquido al comienzo del suministro adicional tenía una concentración de etanol de aproximadamente el 35 %. La cantidad de destilado líquido que se había destilado para el momento en que se inició el suministro adicional era de aproximadamente 120 ml. El etanol y el agua suministrados adicionalmente estaban en forma de una solución acuosa de etanol, de manera específica, un alcohol neutro (que contiene 40 % de etanol). Cada vez que se obtuvieron 30 ml del destilado líquido, se añadieron 30 ml de un alcohol neutro hasta un total de 9 veces (270 ml). En el proceso de tales suministros adicionales, la concentración de etanol del destilado líquido fue de 31,8 % a 39,0 %.

Tres panelistas capacitados realizaron una evaluación sensorial para el aroma de cada fracción, en el que se evaluaron las características del aroma de *Citrus junos* para determinar su intensidad y sus puntuaciones se determinaron mediante consulta mutua. Los criterios para la evaluación fueron los siguientes. Estos también se adoptaron en otros ejemplos.

Puntuación 5: Las características de *Citrus junos* se perciben de forma intensa.

Puntuación 4: Las características de *Citrus junos* se perciben con cierta intensidad.

Puntuación 3: Las características de *Citrus junos* se perciben.

Puntuación 2: Las características de *Citrus junos* se perciben ligeramente.

Puntuación 1: No se perciben las características de *Citrus junos*.

Los resultados de la evaluación se muestran en las Tablas 1 y 2. Estas tablas también enumeran la concentración de etanol y los comentarios. En cuanto al experimento de control, solo se citan los resultados de la evaluación de la mezcla de todas las fracciones (Fracciones 1-6). En la figura 1 se muestran los números de fracción en los experimentos respectivos y la concentración de etanol de cada fracción.

[Tabla 1]

Tabla 1 Resultados del experimento de control con *Citrus junos*

	Concentración de etanol	Puntuación sensorial	Comentarios
Mezcla de todas las fracciones	43,0 %	2	Siendo enmascarado por el sabor cítrico fuerte, el sabor y la jugosidad característicos de <i>Citrus junos</i> eran muy difíciles de percibir.

[Tabla 2]

Tabla 2 Resultados experimentales para el método de la presente invención usando *Citrus junos*

N.º de fracción	Concentración de etanol	Puntuación sensorial	Comentarios
1	70,2 %	1	Se detectó una nota alta fuerte común a los cítricos.
2	61,8 %	2	Un suave aroma a cítrico como el del aceite de <i>Citrus junos</i> comenzó a desarrollarse ligeramente en la nota superior.
3	52,4 %	3	Un suave aroma a cítrico como el del aceite de <i>Citrus junos</i> se volvió algo intenso en la nota superior.
4	41,2 %	5	Un aroma común a los cítricos contenía un suave sabor cítrico como el del aceite de <i>Citrus junos</i> e incluso la marcada jugosidad que era característica de <i>Citrus junos</i> comenzó a desarrollarse y el sabor de <i>Citrus junos</i> se percibió con fuerza.

(continuación)

N.º de fracción	Concentración de etanol	Puntuación sensorial	Comentarios
5	31,8 %	5	El aroma característico de <i>Citrus junos</i> se percibió fuertemente como el anterior, pero el alcohol por volumen disminuyó en el rebasamiento y se desarrolló una sensación de concentrado, aunque muy leve. Se inició el suministro adicional de una solución acuosa de etanol.
6	35,4 %	5	El aroma característico del aceite de <i>Citrus junos</i> y una calidad que era característica del zumo claro de <i>Citrus junos</i> comenzó a cambiar ligeramente a un aroma a cítrico como el de los caramelos. Como el alcohol por volumen aumentó, el aroma a concentrado se estabilizó algo y no se detectó.
7	36,5 %	5	Las características de <i>Citrus junos</i> eran distintas y, a medida que aumentaba la concentración de etanol, desapareció la sensación de concentrado, también.
8	36,8 %	4	La nota de <i>Citrus junos</i> se debilitó ligeramente.
9	37,7 %	4	La nota de <i>Citrus junos</i> cambió gradualmente a un fuerte aroma a caramelo, pero el sabor de <i>Citrus junos</i> se percibió sólidamente.
10	37,8 %	4	La nota de <i>Citrus junos</i> se debilitó ligeramente, pero se mantuvo adecuadamente una cualidad característica de <i>Citrus junos</i> .
11	38,4 %	3	La nota de <i>Citrus junos</i> se debilitó lentamente.
12	39,0 %	3	La nota de <i>Citrus junos</i> se fue debilitando gradualmente. El suministro adicional de la solución acuosa de etanol terminó.
13	39,0 %	3	Un aroma como el del aceite de <i>Citrus junos</i> y una cualidad que era característica del zumo claro de <i>Citrus junos</i> cambió a un aroma a cítrico como el de los caramelos, e incluso se percibió gradualmente un aroma a concentrado.
14	35,3 %	3	Se estaba desarrollando una sensación de concentrado gradualmente distinta.
15	23,6 %	3	Se desarrolló una sensación de concentrado.
16	14,0 %	2	Se desarrolló un cuerpo sucio y una sensación de concentrado.
Mezcla de todas las fracciones	39,4 %	4	Con una característica de calidad de <i>Citrus junos</i> que es distinta, hubo un buen equilibrio entre el desarrollo de una nota alta como la del aceite de <i>Citrus junos</i> y un gusto a <i>Citrus junos</i> con un sabor jugoso. Un sabor suave y dulce que recordaba al albedo, endocarpios y vesículas de zumo de <i>Citrus junos</i> fueron particularmente fuertes.

Como se desprende de las tablas 1 y 2 y la figura 1, el método de la presente invención, en el que se suministraron además etanol y agua, permitió que la concentración de etanol del destilado líquido se mantuviera del 10 al 50 % durante un período más largo que en el experimento de control. Por consiguiente, de acuerdo con el método de la presente invención, el desarrollo excesivo de aromas indeseables, tales como el olor a concentrado y el olor a quemado, podrían retardarse. Además, como se desprende de los comentarios y evaluaciones sensoriales citadas en la Tabla 2, se pudieron adquirir muchas de las fracciones deseadas que contenían el aroma de *Citrus junos*. Y la mezcla que comprende todas las fracciones adquiridas en el método de la presente invención exhibió fuertemente las características del aroma de *Citrus junos* en comparación con el control.

A partir de estos hechos, se considera que el método de la presente invención permite la adquisición selectiva de más componentes aromáticos de materias primas biológicas. Para verificar esto con mayor detalle, se determinó cada una de las fracciones para el contenido de limoneno y linalol como componentes aromáticos primarios de *Citrus junos* y se realizó una comparación. Para fines de medición, se utilizó la tecnología de cromatografía de gases (GLC). Los resultados se muestran en las figuras 2 y 3. La figura 2 muestra los resultados del experimento de control. La adquisición de limoneno (◆) y linalol (■) terminó con la Fracción 7 debido al desarrollo excesivo de un olor a concentrado y un olor a quemado. En cambio, la figura 3 muestra los resultados del método de la presente invención. Antes del desarrollo excesivo del olor a concentrado y el olor a quemado, se podían adquirir muchas de las fracciones que contenían limoneno (◆) y linalol (■) (hasta la Fracción 16). Por consiguiente, se pudieron obtener mayores cantidades de limoneno y linalol que en el control.

Las cantidades totales de los componentes respectivos adquiridos en cada experimento se muestran en la Tabla 3.

[Tabla 3]

Tabla 3 Cantidades de adquisición de componentes respectivos

	Experimento de control	Presente invención	Presente invención/experimento de control
Limoneno	38,38 mg	47,23 mg	123,1 %
Linalool	5,31 mg	9,94 mg	187,2 %

(Ejemplo de referencia)

5 A título de comparación, se realizó una destilación basada en rectificador. La destilación basada en rectificador es un método de destilación en el que parte de un destilado líquido se devuelve al cuello de un alambique.

Excepto por el reflujo de parte de un destilado líquido, la operación del control del Ejemplo 1 se repitió utilizando la misma materia prima que en el experimento de control.

10 En este ejemplo de referencia, se adquirió un destilado líquido en porciones de 30 ml para obtener un total de 11 fracciones. El destilado líquido obtenido posteriormente se desechó.

Tal como en el Ejemplo 1, se realizó una evaluación sensorial para el aroma de cada fracción. Los resultados se muestran en la Tabla 4.

15

[Tabla 4]

Tabla 4 Resultados experimentales para la destilación basada en rectificador usando *Citrus junos*

N.º de fracción	Concentración de etanol	Puntuación sensorial	Comentarios
1	84,9 %	3	Solo se desarrolló una nota alta aguda común a los cítricos.
4	92,7 %	3	Lo mismo que anteriormente. No se detectó ningún aroma característico de <i>Citrus junos</i> .
5	92,3 %	3	Lo mismo que anteriormente. No se detectó ningún aroma característico de <i>Citrus junos</i> .
8	90,1 %	3	Lo mismo que anteriormente. No se detectó ningún aroma característico de <i>Citrus junos</i> .
9	86,9 %	4	Se percibió un refrescante aroma a <i>Citrus junos</i> en la nota superior común a los cítricos.
10	41,7 %	4	También se percibió un aroma a <i>Citrus junos</i> similar a un zumo.
11	5,4 %	2	La sensación de <i>Citrus junos</i> se debilitó e incluso se desarrolló una sensación de concentrado.
Mezcla de todas las fracciones	39,4 %	3	El aroma de <i>Citrus junos</i> se percibió en un aroma a cítrico distinto, pero el llamado aroma a cítrico era tan predominante que el aroma de <i>Citrus junos</i> no se podía percibir.

20 Como se desprende de la Tabla 4, no había muchas fracciones que mostraran fuertemente las características del aroma de *Citrus junos* y la mezcla de todas las fracciones también tuvo resultados de evaluación inferiores que en la presente invención. Esto demuestra que los componentes aromáticos de *Citrus junos* se adquirieron en cantidades más pequeñas.

(Ejemplo 2)

25 Usando las pieles de pomelo, se realizó destilación atmosférica. Se adoptaron dos enfoques, el método de la presente invención en el que se suministraron adicionalmente etanol y agua, y un experimento de control que no implica dicho suministro adicional. El procedimiento de cada experimento fue esencialmente el mismo que el descrito en el Ejemplo 1, excepto que las pieles de pomelo se usaron como materia prima y que la escala de operación se redujo a la mitad.

30 En cada una de la presente invención y el experimento de control, como materia prima se usó una mezcla de 55 g de las pieles de pomelo y 300 ml de un alcohol neutro (que contiene 15 % de etanol).

35 Después de iniciar la destilación en el experimento de control, se adquirió un destilado líquido en porciones de 15 ml para obtener un total de 7 fracciones. Los destilados líquidos obtenidos posteriormente se descartaron.

40 En el método de la presente invención, asimismo, se adquirió un destilado líquido en porciones de 15 ml, produciendo un total de 17 fracciones. Los destilados líquidos obtenidos posteriormente se descartaron. El

suministro adicional de etanol y agua se inició después de la recolección de la Fracción 4 y finalizó después de la adquisición de la Fracción 12. El destilado líquido al comienzo del suministro adicional tenía una concentración de etanol de aproximadamente el 42 %. La cantidad de destilado líquido que se había destilado para el momento en que se inició el suministro adicional era de aproximadamente 60 ml. El etanol y el agua suministrados

- 5 adicionalmente estaban en forma de una solución acuosa de etanol, de manera específica, un alcohol neutro (que contiene 40 % de etanol). Cada vez que se obtuvieron 15 ml del destilado líquido, se añadieron 15 ml de un alcohol neutro hasta un total de 9 veces (135 ml). En el proceso de tales suministros adicionales, la concentración de etanol del destilado líquido fue de 32,8 % a 38,4 %.
- 10 Se realizó una evaluación sensorial para el aroma de fracciones individuales como en el Ejemplo 1. Los resultados de la evaluación se muestran en las Tablas 5 y 6. En cuanto al experimento de control, solo se citan los resultados de la evaluación de la mezcla de todas las fracciones (Fracciones 1-7).

[Tabla 5]

15

Tabla 5 Resultados del experimento de control con pomelo

	Concentración de etanol	Puntuación sensorial	Comentarios
Mezcla de todas las fracciones	42,2 %	3	Las características del pomelo eran algo difíciles de percibir, en parte porque estaban relativamente enmascaradas.

[Tabla 6]

20

Tabla 6 Resultados experimentales para el método de la presente invención usando pomelo

N.º de fracción	Concentración de etanol	Puntuación sensorial	Comentarios
1	60,6 %	3	Se desarrolló un ligero aroma refrescante de cítricos. El aroma de pomelo se percibió algo.
2	65,2 %	4	El ligero aroma refrescante de los cítricos se estabilizó un poco y la sensación de pomelo que se podía percibir aumentó lentamente en intensidad.
3	56,2 %	5	El aroma común a cítricos fue más ligero que el de limón. El aroma refrescante a cítricos se estabilizó un poco y la sensación de pomelo se percibió con intensidad.
4	47,5 %	5	El aroma refrescante a cítricos y la sensación similar al zumo del pomelo fueron intensos.
5	38,4 %	5	Se percibió el aroma refrescante a cítricos y la sensación parecida al zumo de pomelo.
6	33,8 %	5	Se percibió el aroma refrescante a cítricos y la sensación parecida al zumo de pomelo.
7	32,8 %	4	La sensación de pomelo se debilitó ligeramente.
8	33,6 %	4	La sensación de pomelo se debilitó gradualmente. Incluso se desarrolló una ligera sensación de concentrado.
9	33,2 %	4	La sensación de pomelo se debilitó gradualmente. Incluso se desarrolló una ligera sensación de concentrado.
10	32,8 %	4	La sensación refrescante superior de pomelo disminuyó y la sensación similar al zumo de pomelo se hizo predominante.
11	34,5 %	4	La sensación refrescante superior de pomelo disminuyó y la sensación similar al zumo de pomelo se hizo predominante.
12	35,3 %	4	Aún quedaba una característica de calidad del pomelo. Se desarrolló una sensación algo dulce y pesada.
13	35,0 %	4	Aún quedaba una característica de calidad del pomelo. Se desarrolló una sensación algo dulce y pesada.
14	30,0 %	3	Aún quedaba una característica de calidad del pomelo. Se desarrolló una sensación algo dulce y pesada. La cantidad total disminuyó en pequeños grados.
15	23,0 %	3	Aún quedaba una característica de calidad del pomelo. Se desarrolló una sensación algo dulce y pesada. La cantidad total estaba disminuyendo en pequeños grados.
16	18,6 %	2	Se percibió un olor a concentrado y un olor fuerte pesado.
17	11,7 %	2	Se desarrolló una intensa sensación a concentrado.
Mezcla de todas las fracciones	36,6 %	4	Además de la refrescante nota superior de los cítricos, se percibió un sabor similar al zumo, a partir del albedo y los endocarpios que eran exclusivos del pomelo.

5 Las tablas 5 y 6 mostraron la misma tendencia que en el ejemplo 1. En otras palabras, de acuerdo con la presente invención, podría retrasarse el desarrollo de aromas indeseables, tales como un olor a concentrado y un olor a quemado. Es más, en la presente invención, mientras que la concentración de etanol del destilado líquido se mantuvo del 10 al 50 %, se pueden adquirir muchas fracciones deseadas que contienen el aroma de pomelo. Y la mezcla que comprende todas las fracciones del destilado líquido exhibió fuertemente las características del aroma de pomelo en comparación con el control.

10 En cada experimento, se determinaron las cantidades totales de adquisición de linalol y citral como componentes aromáticos primarios del pomelo. Los resultados se muestran en la Tabla 7. La presente invención proporcionó más de esos componentes en comparación con el experimento de control.

[Tabla 7]

15 Tabla 7 Cantidades de adquisición de componentes respectivos

	Experimento de control	Presente invención	Presente invención/experimento de control
Linalool	0,29 mg	0,36 mg	124 %
Citral	0,28 mg	0,40 mg	143 %

20 De los resultados anteriores, quedó claro que el método de la presente invención permite que se adquieran más componentes aromáticos de materias primas biológicas sin aumentar la transferencia de olores no deseados a un destilado líquido.

REIVINDICACIONES

1. Un método para producir una solución acuosa de etanol que tiene un aroma de una materia prima biológica, que comprende las etapas de:
- 5 someter una mezcla de la materia prima biológica, primer etanol y primera agua a destilación, y añadir el segundo etanol y la segunda agua a la mezcla durante la destilación, en el que después de dicha adición, la concentración de etanol del destilado líquido de la destilación en el momento de su producción es del 10 al 50 %, y
- 10 en el que la adición del segundo etanol y la segunda agua se inicia después de que la concentración de etanol del destilado líquido se haya reducido al intervalo de 10 a 50 %.
2. El método de acuerdo con la reivindicación 1, en el que la adición del segundo etanol y la segunda agua se inicia después de que el destilado líquido se produzca en un volumen que es de 0,10 a 0,75 veces el volumen total del primer etanol y la primera agua.
- 15 3. El método según las reivindicaciones 1 o 2, en el que el segundo etanol y la segunda agua se añaden en una relación en volumen de 5:95 a 50:50.
- 20 4. El método de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 3, en el que el volumen total del segundo etanol y la segunda agua es de 0,01 a 3 veces el volumen total del primer etanol y la primera agua.
5. El método de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 4, en el que la destilación es destilación atmosférica.
- 25 6. El método de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 5, en el que la materia prima biológica es al menos un miembro seleccionado entre frutas, pieles de frutas y hierbas.
- 30 7. El método de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 6, en el que la materia prima biológica es al menos un miembro seleccionado de entre cítricos y pieles de cítricos.

FIG. 1

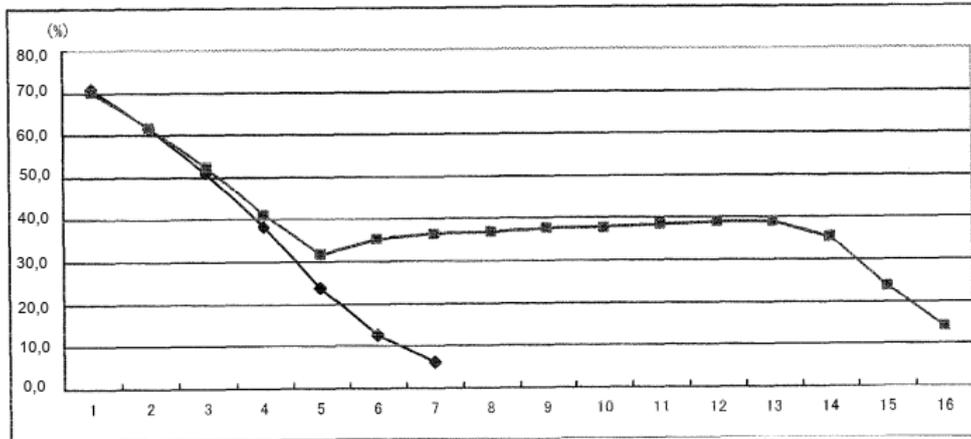


FIG. 2

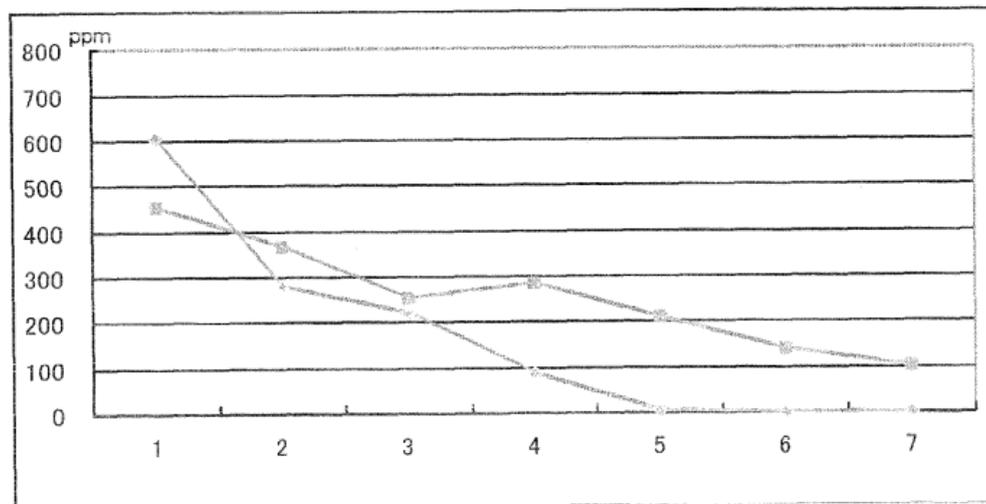


FIG. 3

