

# 日本酒醸造過程を記述する数理モデルとその解析

村瀬 勇介 (YUSUKE MURASE)

広島修道大学・経済科学部 (Faculty of Economic Sciences, Hiroshima Shudo University)

E-mail: ymurase@shudo-u.ac.jp

伊藤 昭夫 (AKIO ITO)

近畿大学・工学部 (Faculty of Engineering, Kinki University)

E-mail: aito@hiro.kindai.ac.jp

## Abstract

本論文の主な目的は、日本酒醸造過程を数理的・工学的視点から考察することによって、それを記述する数理モデルを提案することとそれに基づく数値計算例を提示することである。そして、本研究は温度を活用した日本酒の醸造制御法や醸造管理法を構築するための基礎研究として位置づけられる。

## 1 研究の動機

日本酒は『並行複発酵方式』と呼ばれる発酵方式によって醸造される酒類である。並行複発酵方式は酒類を醸造する方式の中で最も複雑なもののひとつであり、その複雑さから今日に至るまで詳細な醸造データが得られずにいる。また、日本酒醸造の現場では高度な科学技術を有する現代においても杜氏の経験則に依存している醸造過程が未だ存在している。その一方で、杜氏の人数は減少の一途を辿っており、経験知や技術の継承に困難をきたし始めている。さらに、日本酒の消費自体が減少傾向にあることも影響し、日本酒醸造は危機的な状況に直面している。

このような現状を踏まえ、我々は数理的・工学的側面から以下のような目標を設定して研究を行っている。

- (1) 日本酒醸造過程の数理モデル化と数理に基づく解析
- (2) 日本酒醸造における予測手法や制御法の開発
- (3) 杜氏育成プログラムの開発
- (4) 全自動日本酒醸造法の開発に向けた基礎的研究

## 2 日本酒醸造の概要

### 2.1 酒類の製造方法の類別

酒類の醸造方式は以下の3つのタイプに大別され、3大醸造法と呼ばれている。

- (1) 単発酵方式：ワインの醸造に用いられる方式である。この方式では、1種類の細菌あるいは酵素が1つの発酵を行っている。簡単に言えば、醸造過程全体を通してアルコール発酵のみが行われる場合がこれに相当する。
- (2) 単行複発酵方式：ビールの醸造に用いられる方式である。この方式における醸造過程全体は複数種の細菌や酵素による複数の発酵過程を有する。しかし、過程全体を構成する1つ1つの発酵は1種類の細菌あるいは酵素によって行われている。簡単に言えば、単発酵が複数回行われている方式である。
- (3) 並行複発酵方式：日本酒の醸造に用いられる方式である。単行複発酵方式と同様に、醸造過程全体が複数種の細菌や酵素による複数の発酵過程で構成されている。さらに、そのうちの少なくとも1つの発酵過程では複数種の細菌あるいは酵素による複数の発酵が同時に行われている。

このように、並行複発酵方式では複数種の細菌や酵素がお互いに影響（促進・競合・抑制等）を及ぼし合いながら、複数の発酵を同時に進行させていくという特徴を持っている。単発酵方式や単行複発酵方式においては、1つの発酵過程に着目し、それらを積み重ねれば現象のメカニズムを概ね把握することができる。しかし、並行複発酵方式では細菌や酵素がお互いに及ぼし合う影響の度合いによって発酵過程が複雑に進行するため、現象のメカニズムの解明やそのメカニズムを利用した予測・制御を困難にしている。

## 2.2 基本的な日本酒醸造法

日本酒の醸造法には数多くの種類が存在する。しかし、日本酒の醸造に用いる手法はどの手法もいくつかの段階に分かれており、段階の個数や各段階で行われる発酵の内容等によって類別されている。[1]によれば、現在使用されている醸造法の中で最も知られた方法は『三段仕込み』と呼ばれる手法であり、次のような手順で構成されている。

### 2.2.1 麴の育成 (麴米の作成・製麴過程)

蒸米に麴菌の胞子をまぶし、単一の麴菌を蒸米に繁殖させた麴米を作成することが主な目的である。麴菌は蒸米に含まれるデンプンをブドウ糖に分解する糖化を行うために育成される。

### 2.2.2 酒母の作成

『酒母』と呼ばれる材料の作成を行うのが主な目的である。酒母とは仕込み水、蒸米と麴米を混ぜたものに酵母と乳酸を加えた混合材料で、日本酒の仕込みを行う上で土台となるものである。この酒母が正しく作成されれば多量の酵母と適当な量の乳酸が含まれ、以後の発酵過程を円滑に進めることができるようになる。

### 2.2.3 初添

酒母に麴米, 蒸米, 仕込み水を混合し, 日本酒醸造過程の大きな特徴である麴菌による糖化と酵母によるアルコール発酵が本格的に開始される. 簡単に言えば, 日本酒の醸造が開始される. この混合材料は『醪』と呼ばれる.

### 2.2.4 仲添

醪に麴米, 蒸米, 仕込み水を再度混合し, 発酵を継続する.

### 2.2.5 留添

残りの麴米, 蒸米, 仕込み水を全て醪と混合し, 発酵を継続する. 従って, 『三段仕込み』では主な原料である蒸米, 仕込み水と最初の段階で作成した麴米は留添段階に入るまで利用され, 醪の中では麴菌による糖化と酵母によるアルコール発酵が常に同時進行していることに注意する.

## 2.3 醸造過程における化学変化の概要

今回提唱する数理モデルでは, 主に日本酒醸造過程において発生している化学変化を化学反応速度論を用いて定式化している. その際, 以下のように複数の化学変化を1つの化学変化として単純化したり, 本来は数種類存在する成分を1つの成分カテゴリーとして捉えたりしていることに注意する.

例えば, デンプンは $\alpha$ -グルコースが重合した高分子である. そのため, デンプンは単純に1つの化学反応でブドウ糖に分解されるわけではなく, いくつかの化学反応を経て分解されるのが一般的である. そのため, 化学反応が最後まで進行しなければ, 重合度の低いデンプンが残ることもある. しかし, 今回提案する数理モデルでは, すべてのデンプンは1つの化学反応でブドウ糖に分解されるということになっている.

また, 米に含まれるタンパク質が分解されて得られるペプチドに関しても非常に多くの種類が存在していることが既に知られている. にもかかわらず, 各種類に関する詳細なデータは一般には知られていない. 結果として, 数多くの種類が存在するペプチドを各種ごとに追跡することは困難を極める. そこで, 今回提案する数理モデルではそれらのペプチドを1つの大きなカテゴリー単位としてまとめて取り扱うこととしている.

このような視点に立って, 日本酒醸造過程で引き起こされている化学変化について以下のような仮定を設定する:

- (1) 蒸米に含まれる成分はデンプン, タンパク質と脂肪である.
- (2) デンプンは麴菌によってブドウ糖に分解される.
- (3) ブドウ糖は酵母によってアルコールと有機酸に分解される.

- (4) タンパク質は麹菌によってペプチドとアミノ酸に分解される。
- (5) ペプチドとアミノ酸の一部は酵母によって高級アルコールに分解される。
- (6) アミノ酸の一部はアミノ酸と高級アルコールに分解される。
- (7) 脂肪は麹菌によって脂肪酸とグリセリンに分解される。
- (8) 脂肪酸は酵母によってエステルに分解される。

上記の化学変化をまとめ、模式図にしたものが次の図1である。

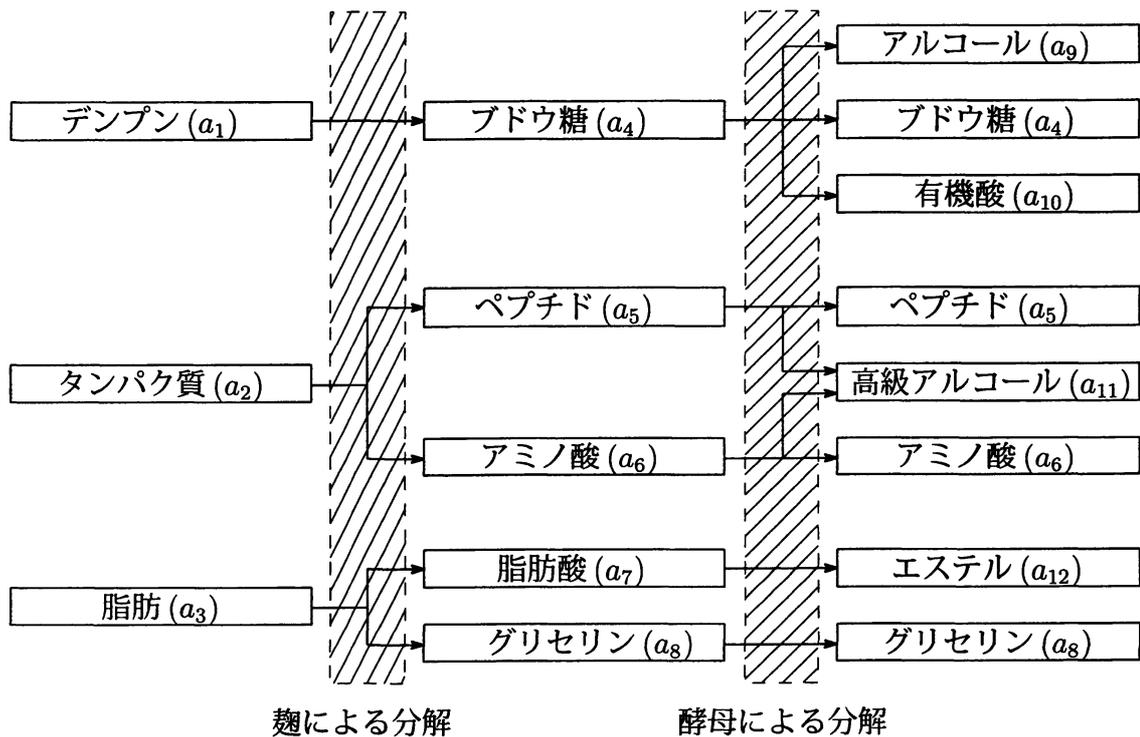


図1: 日本酒醸造過程における化学変化の模式図

### 3 数理モデル

#### 3.1 領域の設定

本節では、2.2節で説明した日本酒醸造方式の1つである『三段仕込み』方式を数理モデル化する。そのために、 $\mathbf{R}^N$  ( $N = 1, 2, 3$ ) 内の時間依存する十分滑らかな境界を持つ単連結領域族  $\{\Omega_k(t)\} (k = 1, 2, 3)$  を準備する。本論文では、任意の領域  $D \subset \mathbf{R}^N$  の境界を  $\partial D$  で表す。

- (1) 領域  $\Omega_1(t)$  は時間  $t$  における製麹過程で使用される領域である。さらに、この領域は留添段階に移行する時間  $T_4$  まで使用される。ここで、注意しなければならないことは時間  $T_4$  は仲添段階から留添段階へと移行する未知の時間であり、醪の状態で決定される。

- (2) 領域  $\Omega_2(t)$  は時間  $t$  における酒母の領域であり, 酒母の育成期間  $T_1 \leq t < T_2$  で使用される. ここで, 酒母を育成し始める時間  $T_1$  と初添段階に移行する時間  $T_2$  はともに未知であり, それぞれ麹菌の繁殖状態と酵母の育成状況で決定される. さらに, 以下の条件が成り立つ:

(C1) 次の2つの条件を満たす単連結領域  $\Omega_{1,1}$  が存在する:

- (i)  $\Omega_1(t) \longrightarrow \hat{\Omega}_1(T_1) := \Omega_1(T_1) \cup \Omega_{1,1} \cup (\partial\Omega_1(T_1) \cap \partial\Omega_{1,1})$   
in the sense of Hausdorff distance as  $t \uparrow T_1$ .
- (ii)  $\partial\Omega_1(T_1) \cap \partial\Omega_{1,1} \neq \emptyset$ .

(C2) 十分正則な同相写像  $\Phi_1 : \mathbf{R}^N \longrightarrow \mathbf{R}^N$  が存在して,  $\Omega_2(T_1) = \Phi_1(\Omega_{1,1})$  を満たす.

- (3) 領域  $\Omega_3(t)$  は時間  $t$  における醪の領域であり, 初添段階の開始から留添段階の終了までの期間  $T_2 \leq t \leq T$  で使用される. ここで, 時間  $T$  はあらかじめ前もって設定された製麴過程の開始から留添段階の終了までの日本酒醸造過程に要する既知の時間である. その一方で, 初添段階から仲添段階へと移行する時間  $T_3$  と仲添段階から留添段階へと移行する時間  $T_4$  はともに醪の状態で決定される未知の時間である. さらに, 以下の条件が成り立つ:

(C3) 次の2つの条件を満たす単連結領域  $\Omega_{1,2}$  が存在する:

- (i)  $\Omega_1(t) \longrightarrow \hat{\Omega}_1(T_2) := \Omega_1(T_2) \cup \Omega_{1,2} \cup (\partial\Omega_1(T_2) \cap \partial\Omega_{1,2})$   
in the sense of Hausdorff distance as  $t \uparrow T_2$ .
- (ii)  $\partial\Omega_1(T_2) \cap \partial\Omega_{1,2} \neq \emptyset$ .

(C4)  $\Omega_2(T_2) = \emptyset$ .

(C5) 次の収束を満たす単連結領域  $\hat{\Omega}_2(T_2)$  が存在する:

$$\Omega_2(t) \longrightarrow \hat{\Omega}_2(T_2) \quad \text{in the sense of Hausdorff distance as } t \uparrow T_2.$$

(C6)  $\Gamma_{1,2} \subset \partial\Omega_{1,2}$  と十分正則な同相写像  $\Phi_2 : \mathbf{R}^N \longrightarrow \mathbf{R}^N$  が存在して,

$$\Omega_3(T_2) = \Phi_2(\hat{\Omega}_2(T_2) \cup \Omega_{1,2} \cup \Gamma_{1,2})$$

を満たす.

(C7) 次の2つの条件を満たす単連結領域  $\Omega_{1,3}$  が存在する:

- (i)  $\Omega_1(t) \longrightarrow \hat{\Omega}_1(T_3) := \Omega_1(T_3) \cup \Omega_{1,3} \cup (\partial\Omega_1(T_3) \cap \partial\Omega_{1,3})$   
in the sense of Hausdorff distance as  $t \uparrow T_3$ .
- (ii)  $\partial\Omega_1(T_3) \cap \partial\Omega_{1,3} \neq \emptyset$ .

(C8) 次の収束を満たす単連結領域  $\hat{\Omega}_3(T_3)$  が存在する :

$$\Omega_3(t) \longrightarrow \hat{\Omega}_3(T_3) \quad \text{in the sense of Hausdorff distance as } t \uparrow T_3.$$

(C9)  $\Gamma_{1,3} \subset \partial\Omega_{1,3}$  と十分正則な同相写像  $\Phi_3 : \mathbf{R}^N \longrightarrow \mathbf{R}^N$  が存在して,

$$\Omega_3(T_3) = \Phi_3(\hat{\Omega}_3(T_3) \cup \Omega_{1,3} \cup \Gamma_{1,3})$$

を満たす.

(C10)  $\Omega_1(T_4) = \emptyset$ .

(C11) 次の収束を満たす単連結領域  $\hat{\Omega}_k(T_4)$  ( $k = 1, 3$ ) が存在する :

$$\Omega_k(t) \longrightarrow \hat{\Omega}_k(T_4) \quad \text{in the sense of Hausdorff distance as } t \uparrow T_4.$$

(C12)  $\Gamma_1(T_4) \subset \partial\hat{\Omega}_1(T_4)$  と十分正則な同相写像  $\Phi_4 : \mathbf{R}^N \longrightarrow \mathbf{R}^N$  が存在して,

$$\Omega_3(T_4) = \Phi_4(\hat{\Omega}_1(T_4) \cup \hat{\Omega}_3(T_4) \cup \Gamma_1(T_4))$$

を満たす.

さらに, (1)–(3) で設定した時間依存領域  $\{\Omega_k(t)\}$  に関して以下の条件を仮定する.

(4) 条件 (C13) を満たす同相写像族

$$\{\Psi_1(t) \mid \forall t \in [0, T_1], \Psi_1(t) : \Omega_1(0) \longrightarrow \Omega_1(t)\}$$

が存在する :

$$(C13) \quad \left( \begin{array}{l} \text{任意の } x_{1,1} \in \hat{\Omega}_1(T_1) \text{ に対して} \\ (\Psi_1(t))(y_{1,1}) \longrightarrow x_{1,1} \quad \text{as } t \uparrow T_1 \\ \text{を満たす } y_{1,1} \in \Omega_1(0) \text{ が唯 1 つ存在する.} \end{array} \right.$$

(5) 条件 (C14) を満たす同相写像族

$$\{(\Psi_{2,1}(t), \Psi_{2,2}(t)) \mid i = 1, 2, \forall t \in [T_1, T_2], \Psi_{2,i}(t) : \Omega_i(T_1) \longrightarrow \Omega_i(t)\}$$

が存在する :

$$(C14) \quad \left( \begin{array}{l} \text{任意の } (x_{2,1}, x_{2,2}) \in \hat{\Omega}_1(T_2) \times \hat{\Omega}_2(T_2) \text{ に対して} \\ ((\Psi_{2,1}(t))(y_{2,1}), (\Psi_{2,2}(t))(y_{2,2})) \longrightarrow (x_{2,1}, x_{2,2}) \quad \text{as } t \uparrow T_2 \\ \text{を満たす } (y_{2,1}, y_{2,2}) \in \Omega_1(T_1) \times \Omega_2(T_1) \text{ が唯 1 つ存在する.} \end{array} \right.$$

(6) 各  $k \in 3, 4$  に対して, 条件  $(C15)_k$  を満たす同相写像族

$$\{(\Psi_{k,1}(t), \Psi_{k,3}(t)) \mid i = 1, 3, \forall t \in [T_{k-1}, T_k], \Psi_{k,i}(t) : \Omega_i(T_{k-1}) \longrightarrow \Omega_i(t)\}$$

が存在する:

$$(C15)_k \left( \begin{array}{l} \text{任意の } (x_{k,1}, x_{k,3}) \in \hat{\Omega}_1(T_k) \times \hat{\Omega}_3(T_k) \text{ に対して} \\ ((\Psi_{k,1}(t))(y_{k,1}), (\Psi_{k,3}(t))(y_{k,3})) \longrightarrow (x_{k,1}, x_{k,3}) \text{ as } t \uparrow T_k \\ \text{を満たす } (y_{k,1}, y_{k,3}) \in \Omega_1(T_{k-1}) \times \Omega_3(T_{k-1}) \text{ が唯 1 つ存在する.} \end{array} \right.$$

**注意.** 上記の設定では, 以下の点に注意する必要がある.

- (i) 領域  $\Omega_1(t)$  は  $[0, T_4)$  上で存在し, 時間  $T_4$  で空集合となる. 言い換えれば, 留添段階に移行する時間  $T_4$  で消滅する. さらに, 時間  $T_i$  ( $i = 1, 2, 3$ ) で不連続に変化する.
- (ii) 領域  $\Omega_2(t)$  は  $[T_1, T_2)$  上で存在し, 時間  $T_2$  で空集合となる. 言い換えれば, 酒母の作成を開始する時間  $T_1$  で発生し, 初添段階に移行する時間  $T_2$  で消滅する.
- (iii) 領域  $\Omega_3(t)$  は  $[T_2, T]$  上で存在する. 言い換えれば, 初添段階に移行する時間  $T_2$  で発生し, その後, 留添段階が終了する時間  $T$  まで存在する. さらに, 時間  $T_i$  ( $i = 3, 4$ ) で不連続に変化する.

最後に, 時間依存領域  $\{\Omega(t)\}$  を次のように定義する:

$$\Omega(t) := \begin{cases} \Omega_1(t), & \text{if } t \in [0, T_1) \\ \Omega_1(t) \cup \Omega_2(t), & \text{if } t \in [T_1, T_2) \\ \Omega_1(t) \cup \Omega_3(t), & \text{if } t \in [T_2, T_4) \\ \Omega_3(t), & \text{if } t \in [T_4, T] \end{cases}$$

## 3.2 各細菌と各成分の集中度に対する数理モデル

本小節に登場する  $c_i$  はすべて非負の定数または非負値関数を表すものとする. また, 未知時間  $T_i$  ( $i = 1, 2, 3, 4$ ) とそれに伴う初期条件の設定方法については次小節で詳細に述べる.

### 3.2.1 麹菌 $u_1$

麹菌の集中度の変化率はその集中度に比例し, その比例定数となる増殖率やアポトーシス率は温度に依存する. さらに, それは他の細菌とアルコールの集中度に比例して減少する. 以上の設定の下で, 麹菌の拡散を考慮すると次の方程式が得られる.

$$\begin{cases} \frac{\partial u_1}{\partial t} = k_1 \Delta u_1 + (c_1(\theta) - c_2(\theta))u_1 - c_3 u_2 - c_4 u_3 - c_5 a_9 & \text{on } Q := \bigcup_{0 < t < T} (\{t\} \times \Omega(t)), \\ \frac{\partial u_1}{\partial n} = 0 & \text{on } \Sigma := \bigcup_{0 < t < T} (\{t\} \times \partial\Omega(t)). \end{cases} \quad (1)$$

### 3.2.2 酵母 $u_2$

麹菌と同様の条件を設定すると次の方程式が得られる.

$$\begin{cases} \frac{\partial u_2}{\partial t} = k_2 \Delta u_2 - c_6 u_1 + (c_7(\theta) - c_8(\theta)) u_2 - c_9 u_3 - c_{10} a_9 & \text{on } Q, \\ \frac{\partial u_2}{\partial n} = 0 & \text{on } \Sigma. \end{cases} \quad (2)$$

### 3.2.3 雑菌 (乳酸菌等) $u_3$

麹菌と同様の条件を設定する. さらに, 雑菌は乳酸による増殖抑制効果を他の菌に比べて強く受けるので, この効果を表現する項を付け加える. このとき, 次の方程式が得られる.

$$\begin{cases} \frac{\partial u_3}{\partial t} = k_3 \Delta u_3 - c_{11} u_1 - c_{12} u_2 + (c_{13}(\theta) - c_{14}(\theta)) u_3 - c_{15} a_9 - c_{16} a_{13} & \text{on } Q, \\ \frac{\partial u_3}{\partial n} = 0 & \text{on } \Sigma. \end{cases} \quad (3)$$

### 3.2.4 温度 $\theta$

次の熱方程式を用いる. ここで,  $h(u_1, u_2, u_3)$  は各菌が活動する際に発する熱を表現する. また, 日本酒醸造の現場では原料等の温度を室温管理によって間接的に制御するので, これを表現するために Dirichlet 境界条件を課す.

$$\begin{cases} \frac{\partial \theta}{\partial t} = k_4 \Delta \theta + h(u_1, u_2, u_3) & \text{in } Q, \\ \theta = f_1 & \text{on } \Sigma. \end{cases} \quad (4)$$

### 3.2.5 菌の生存量の範囲 $K_0(\theta)$

麹菌・酵母・雑菌はそれぞれ競合し合いながら増殖やアポトーシスを繰り返すが, その総生存量はある一定の範囲に収まっていると仮定する. また, 日本酒醸造の現場では温度管理が厳しくなされていることから, それぞれの菌には活動に適した温度が存在すると思われる. そこで, 菌の総生存量を制限する範囲が温度に依存することを表現するために, 次の制約条件 (5) を満たす写像  $K_0 : (0, \infty) \rightarrow 2^{\mathbb{R}^N}$  が存在すると仮定する:

$$(u_1, u_2, u_3) \in K_0(\theta) \quad \text{on } Q. \quad (5)$$

### 3.2.6 デンプン $a_1$

デンプンは蒸米のみに含まれており、麹菌が分泌するデンプン分解酵素(アミラーゼ)が行う糖化により分解される。その減少率は麹菌の集中度とアミラーゼの集中度を同一視することによって、それとデンプンの集中度の積に比例すると仮定する。以上の設定の下で、デンプンの拡散を考慮すると次の方程式が得られる。

$$\begin{cases} \frac{\partial a_1}{\partial t} = k_5 \Delta a_1 - c_{17} a_1 u_1 & \text{in } Q, \\ \frac{\partial a_1}{\partial n} = 0 & \text{on } \Sigma. \end{cases} \quad (6)$$

### 3.2.7 タンパク質 $a_2$

蒸米には微量のタンパク質が含まれている。このタンパク質は日本酒醸造過程において麹菌が分泌するタンパク質分解酵素(プロテアーゼ)により分解される。ここで、デンプンと同様の考え方をすれば次の方程式が得られる。しかし、この反応は  $\Omega_1(t)$  の領域内では起こらないと仮定する。

$$\begin{cases} \frac{\partial a_2}{\partial t} = k_6 \Delta a_2 - c_{18} a_2 u_1 & \text{in } Q_1 := \bigcup_{T_1 < t < T} (\{t\} \times (\Omega(t) \setminus \Omega_1(t))), \\ \frac{\partial a_2}{\partial n} = 0 & \text{on } \Sigma_1 := \bigcup_{T_1 < t < T} (\{t\} \times \partial(\Omega(t) \setminus \Omega_1(t))). \end{cases} \quad (7)$$

### 3.2.8 脂肪 $a_3$

蒸米には微量の脂肪が含まれている。この脂肪は日本酒醸造過程において麹菌が分泌する脂肪分解酵素(リパーゼ)により分解される。ここで、デンプンと同様の考え方をすれば次の方程式が得られる。しかし、この分解は  $\Omega_1(t)$  の領域内では起こらないと仮定する。

$$\begin{cases} \frac{\partial a_3}{\partial t} = k_7 \Delta a_3 - c_{19} a_3 u_1 & \text{in } Q_1, \\ \frac{\partial a_3}{\partial n} = 0 & \text{on } \Sigma_1. \end{cases} \quad (8)$$

### 3.2.9 ブドウ糖 $a_4$

ブドウ糖は麹菌がデンプンを分解することによって生成される。その一方で、酵母の働きによるアルコール発酵と麹菌のエネルギー源として消費される。また、ブドウ糖は食品添加によって補充されることがあるので、それに対応した外力項を付け加える。以上の設定の下で、ブドウ糖の拡散を考慮すると次の方程式が得られる。

$$\begin{cases} \frac{\partial a_4}{\partial t} = k_8 \Delta a_4 + c_{20} a_1 u_1 - (c_{21} u_2 + c_{22} u_1) a_4 + f_2 & \text{in } Q, \\ \frac{\partial a_4}{\partial n} = 0 & \text{on } \Sigma. \end{cases} \quad (9)$$

### 3.2.10 ペプチド $a_5$

ペプチドは麹菌がタンパク質を分解することによって生成される。その一方で、生成されたペプチドの一部は酵母の働きによって高級アルコールに分解される。以上の設定の下で、ペプチドの拡散を考慮すると次の方程式が得られる。しかし、この反応は  $\Omega_1(t)$  の領域内では起こらないと仮定する。

$$\begin{cases} \frac{\partial a_5}{\partial t} = k_9 \Delta a_5 + c_{23} a_2 u_1 - c_{24} a_5 u_2 & \text{in } Q_1, \\ \frac{\partial a_5}{\partial n} = 0 & \text{on } \Sigma_1. \end{cases} \quad (10)$$

### 3.2.11 アミノ酸 $a_6$

アミノ酸は麹菌がタンパク質を分解することによって生成される。その一方で、生成されたアミノ酸の一部は酵母の働きによって高級アルコールに分解される。また、アミノ酸は食品添加によって補充されることがあるので、それに対応した外力項を付け加える。以上の設定の下で、アミノ酸の拡散を考慮すると次の方程式が得られる。ただし、この反応は  $\Omega_1(t)$  の領域内では起こらないと仮定する。

$$\begin{cases} \frac{\partial a_6}{\partial t} = k_{10} \Delta a_6 + c_{25} a_2 u_1 - c_{26} a_6 u_2 + f_3 & \text{in } Q_1, \\ \frac{\partial a_6}{\partial n} = 0 & \text{on } \Sigma_1. \end{cases} \quad (11)$$

### 3.2.12 脂肪酸 $a_7$

脂肪酸は麹菌が脂肪を分解することによって生成される。その一方で、生成された脂肪酸の一部は酵母の働きによってエステルに分解される。以上の設定の下で、エステルの拡散を考慮すると次の方程式が得られる。ただし、この反応は  $\Omega_1(t)$  の領域内では起こらないと仮定する。

$$\begin{cases} \frac{\partial a_7}{\partial t} = k_{11} \Delta a_7 + c_{27} a_3 u_1 - c_{28} a_7 u_2 & \text{in } Q_1, \\ \frac{\partial a_7}{\partial n} = 0 & \text{on } \Sigma_1. \end{cases} \quad (12)$$

### 3.2.13 グリセリン $a_8$

グリセリンは麹菌が脂肪を分解することによって生成されるが、酵母の影響はほとんどない。以上の設定の下で、グリセリンの拡散を考慮すると次の方程式が得られる。ただし、この反応は  $\Omega_1(t)$  の領域内では起こらないと仮定する。

$$\begin{cases} \frac{\partial a_8}{\partial t} = k_{12} \Delta a_8 + c_{29} a_3 u_1 & \text{in } Q_1, \\ \frac{\partial a_8}{\partial n} = 0 & \text{on } \Sigma_1. \end{cases} \quad (13)$$

### 3.2.14 アルコール $a_9$

アルコールは酵母がブドウ糖を分解するアルコール発酵によって生成される。さらに、食品添加によって補充されることもあるので、それに対応する外力項を付け加える。以上の設定の下で、アルコールの拡散を考慮すると次の方程式が得られる。ただし、この反応は  $\Omega_1(t)$  の領域内では起こらないと仮定する。

$$\begin{cases} \frac{\partial a_9}{\partial t} = k_{13}\Delta a_9 + c_{30}a_4u_2 + f_4 & \text{in } Q_1, \\ \frac{\partial a_9}{\partial n} = 0 & \text{on } \Sigma_1. \end{cases} \quad (14)$$

### 3.2.15 有機酸 $a_{10}$

有機酸は酵母がブドウ糖を分解することによって生成される。さらに、食品添加によって補充されることもあるので、それに対応する外力項を付け加える。以上の設定の下で、有機酸の拡散を考慮すると次の方程式が得られる。ただし、この反応は  $\Omega_1(t)$  の領域内では起こらないと仮定する。

$$\begin{cases} \frac{\partial a_{10}}{\partial t} = k_{14}\Delta a_{10} + c_{31}a_4u_2 + f_5 & \text{in } Q_1, \\ \frac{\partial a_{10}}{\partial n} = 0 & \text{on } \Sigma_1. \end{cases} \quad (15)$$

### 3.2.16 高級アルコール $a_{11}$

高級アルコールは酵母がペプチドとアミノ酸を分解することによって生成される。この設定の下で、高級アルコールの拡散を考慮すると次の方程式が得られる。ただし、この反応は  $\Omega_1(t)$  の領域内では起こらないと仮定する。

$$\begin{cases} \frac{\partial a_{11}}{\partial t} = k_{15}\Delta a_{11} + (c_{32}a_5 + c_{33}a_6)u_2 & \text{in } Q_1, \\ \frac{\partial a_{11}}{\partial n} = 0 & \text{on } \Sigma_1. \end{cases} \quad (16)$$

### 3.2.17 エステル $a_{12}$

エステルは酵母が脂肪酸を分解することによって生成される。この設定の下で、エステルの拡散を考慮すると次の方程式が得られる。ただし、この反応は  $\Omega_1(t)$  の領域内では起こらないと仮定する。

$$\begin{cases} \frac{\partial a_{12}}{\partial t} = k_{16}\Delta a_{12} + c_{34}a_7u_2 & \text{in } Q_1, \\ \frac{\partial a_{12}}{\partial n} = 0 & \text{on } \Sigma_1. \end{cases} \quad (17)$$

### 3.2.18 乳酸 $a_{13}$

雑菌の1つである乳酸菌の活動が活発になることによって、乳酸が生成される。また、乳酸は酒母や醪に添加される場合がある。そこで、乳酸の増加率は雑菌の集中度に比例すると仮定する。また、乳酸菌の酒母仕込み時の添加は  $t = T_1$  における初期値で、醪への添加は外力項で表現する。以上の設定の下で、乳酸の拡散を考慮すると次の方程式が得られる。ただし、この反応は  $\Omega_1(t)$  の領域内では起こらないと仮定する。

$$\begin{cases} \frac{\partial a_{13}}{\partial t} = k_{17}\Delta a_{13} + c_{35}u_3 + f_6 & \text{in } Q_1, \\ \frac{\partial a_{13}}{\partial n} = 0 & \text{on } \Sigma_1. \end{cases} \quad (18)$$

### 3.3 未知時間の決定方法と初期値の設定

未知時間  $T_i$  ( $i = 1, 2, 3, 4$ ) は次のように決定する。

- (1) 時間  $T_1$  は酒母の作成を開始する時間であり、麴菌の状態決定される。つまり、麴菌の繁殖状況を評価する関数  $J_1 : [0, \infty) \rightarrow [0, \infty)$  と閾値  $\delta_1 > 0$  に対して、 $T_1$  を

$$T_1 := \inf \{t \in (0, \infty) \mid J_1(t) \geq \delta_1\}$$

で定義する。例えば、麴菌の繁殖状況を評価する関数  $J_1$  の例として、

$$J_1(t) := \frac{1}{|\Omega_1(t)|} \int_{\Omega_1(t)} u_1(x, t) dx$$

が挙げられる。

- (2) 時間  $T_2$  は初添段階に入る時間であり、酵母の状態決定される。つまり、酵母の育成状況を評価する関数  $J_2 : [T_1, \infty) \rightarrow [0, \infty)$  と閾値  $\delta_2 > 0$  に対して、 $T_2$  を

$$T_2 := \inf \{t \in (T_1, \infty) \mid J_2(t) \geq \delta_2\}$$

で定義する。例えば、酵母の育成状況を評価する関数  $J_2$  の例として、

$$J_2(t) := \int_{\Omega_2(t)} u_2(x, t) dx$$

が挙げられる。

- (3) 時間  $T_3$  は初添段階から仲添段階へ、時間  $T_4$  は仲添段階から留添段階へと移行する時間を表している。そして、その時間は醪の状態決定される。日本酒醸造では、醪の状態はアルコール度数（または、ボーメ度）で把握するのが一般的である。つまり、アル

コール度数に係わる量を用いて算出される関数  $J_i : [T_2, \infty) \rightarrow [0, \infty)$  ( $i = 3, 4$ ) と閾値  $\delta_i > 0$  に対して,  $T_i$  を

$$T_i := \inf \{t \in (T_{i-1}, \infty) \mid J_i(t) \geq \delta_i\}$$

で定義する. 例えば,  $J_i$  の例として醗全体に占めるアルコール量の平均値を与える関数

$$J_i(t) := \frac{1}{|\Omega_3(t)|} \int_{\Omega_3(t)} a_9(x, t) dx$$

が挙げられる.

次に, 初期値の設定方法について述べる. 我々が提案する数理モデルの大きな特徴の1つは, 時間依存領域  $\{\Omega(t)\}$  が時間  $T_i$  ( $i = 1, 2, 3, 4$ ) で不連続に変化することにある. つまり, 時間  $T_i$  で初期値をどのように設定するかは非常に大きな問題である. 本論文では, 1つの設定方法を例として挙げる.

(1)  $t = 0$  のとき

$$\left\{ \begin{array}{l} u_i(x, 0) = u_{i,0}(x) \quad \text{a.e. } x \in \Omega(0) \quad (i = 1, 2, 3), \\ \theta(x, 0) = \theta_0(x) \quad \text{a.e. } x \in \Omega(0), \\ (u_{1,0}(x), u_{2,0}(x), u_{3,0}(x)) \in K_0(\theta_0(x)) \quad \text{a.e. } x \in \Omega(0), \\ a_i(x, 0) = a_{i,0}(x) \quad \text{a.e. } x \in \Omega(0) \quad (i = 1, 4). \end{array} \right.$$

(2)  $t = T_1$  のとき

(C1), (C2), (C13) より, 任意の  $x \in \Omega(T_1)$  に対して, 次の条件を満たす  $y_x \in \Omega(0)$  が唯1つ存在する:

(i)  $x \in \Omega_1(T_1)$  のとき,

$$(\Psi_1(t))(y_x) \rightarrow x \quad \text{as } t \uparrow T_1.$$

(ii)  $x \in \Omega_2(T_1)$  のとき,

$$(\Psi_1(t))(y_x) \rightarrow \Phi_1^{-1}(x) \quad \text{as } t \uparrow T_1.$$

この事実を利用して,  $t = T_1$  における初期値を次のように定義する:

$$\left\{ \begin{array}{l} u_i(x, T_1) = \lim_{t \uparrow T_1} u_i((\Psi_1(t))(y_x), t) \quad \text{a.e. } x \in \Omega(T_1) \quad (i = 1, 2, 3), \\ \theta(x, T_1) = \lim_{t \uparrow T_1} \theta((\Psi_1(t))(y_x), t) \quad \text{a.e. } x \in \Omega(T_1), \\ a_i(x, T_1) = \lim_{t \uparrow T_1} a_i((\Psi_1(t))(y_x), t) \quad \text{a.e. } x \in \Omega(T_1) \quad (i = 1, 4), \\ a_i(x, T_1) = a_{i,1}(x) \quad \text{a.e. } x \in \Omega_2(T_1) \quad (1 \leq i \leq 13; i \neq 1, 4). \end{array} \right.$$

(3)  $t = T_2$  のとき

(C3)–(C6), (C14) より, ほとんど至る所すべての  $x \in \Omega(T_2)$  に対して, 次の条件を満たす  $y_x \in \Omega(T_1)$  が唯1つ存在する:

(i)  $x \in \Omega_1(T_2)$  のとき,

$$(\Psi_{2,1}(t))(y_x) \longrightarrow x \quad \text{as } t \uparrow T_2$$

を満たす  $y_x \in \Omega_1(T_1)$  が唯1つ存在する.

(ii)  $x \in \Omega_3(T_2)$  のとき,

$$x = \Phi_2(z_x)$$

を満たす  $z_x \in \hat{\Omega}_2(T_2) \cup \Omega_{1,2} \cup \Gamma_{1,2}$  が唯1つ存在する. ここで,  $z_x \notin \Gamma_{1,2}$  の場合のみを考えれば十分である.

•  $z_x \in \Omega_{1,2}$  のとき,

$$(\Psi_{2,1}(t))(y_x) \longrightarrow \Phi_2^{-1}(x) \quad \text{as } t \uparrow T_1$$

を満たす  $y_x \in \Omega_1(T_1)$  が唯1つ存在する.

•  $z_x \in \hat{\Omega}_2(T_2)$  のとき,

$$(\Psi_{2,2}(t))(y_x) \longrightarrow \Phi_2^{-1}(x) \quad \text{as } t \uparrow T_1$$

を満たす  $y_x \in \Omega_2(T_1)$  が唯1つ存在する.

この事実を利用して,  $t = T_2$  における初期値を次のように定義する:

$$\left\{ \begin{array}{l} u_i(x, T_2) = \lim_{t \uparrow T_2} u_i((\Psi_{2,\ell}(t))(y_x), t) \quad \text{a.e. } x \in \Omega(T_2) \quad (i = 1, 2, 3; \ell = 1, 2), \\ \theta(x, T_2) = \lim_{t \uparrow T_2} \theta((\Psi_{2,\ell}(t))(y_x), t) \quad \text{a.e. } x \in \Omega(T_2) \quad (\ell = 1, 2), \\ a_i(x, T_2) = \lim_{t \uparrow T_2} a_i((\Psi_{2,\ell}(t))(y_x), t) \quad \text{a.e. } x \in \Omega(T_2) \quad (i = 1, 4; \ell = 1, 2), \\ a_i(x, T_2) = \lim_{t \uparrow T_2} a_i((\Psi_{2,\ell}(t))(y_x), t) \quad \text{a.e. } x \in \Omega_3(T_2) \quad (1 \leq i \leq 13; i \neq 1, 4; \ell = 1, 2). \end{array} \right.$$

(4)  $t = T_3$  のとき

(C7)–(C9), (C11), (C15)<sub>3</sub> より, ほとんど至る所すべての  $x \in \Omega(T_3)$  に対して, 次の条件を満たす  $y_x \in \Omega(T_2)$  が唯1つ存在する:

(i)  $x \in \Omega_1(T_3)$  のとき,

$$(\Psi_{3,1}(t))(y_x) \longrightarrow x \quad \text{as } t \uparrow T_3$$

を満たす  $y_x \in \Omega_1(T_2)$  が唯1つ存在する.

(ii)  $x \in \Omega_3(T_3)$  のとき,

$$x = \Phi_2(z_x)$$

を満たす  $z_x \in \hat{\Omega}_3(T_3) \cup \Omega_{1,3} \cup \Gamma_{1,3}$  が唯1つ存在する. ここで,  $z_x \notin \Gamma_{1,3}$  の場合のみを考えれば十分である.

- $z_x \in \Omega_{1,3}$  のとき,

$$(\Psi_{3,1}(t))(y_x) \longrightarrow \Phi_3^{-1}(x) \quad \text{as } t \uparrow T_3$$

を満たす  $y_x \in \Omega_1(T_2)$  が唯1つ存在する.

- $z_x \in \hat{\Omega}_3(T_3)$  のとき,

$$(\Psi_{3,3}(t))(y_x) \longrightarrow \Phi_3^{-1}(x) \quad \text{as } t \uparrow T_3$$

を満たす  $y_x \in \Omega_3(T_2)$  が唯1つ存在する.

この事実を利用して,  $t = T_3$  における初期値を次のように定義する:

$$\left\{ \begin{array}{l} u_i(x, T_3) = \lim_{t \uparrow T_3} u_i((\Psi_{3,\ell}(t))(y_x), t) \quad \text{a.e. } x \in \Omega(T_3) \quad (i = 1, 2, 3; \ell = 1, 3), \\ \theta(x, T_3) = \lim_{t \uparrow T_3} \theta((\Psi_{3,\ell}(t))(y_x), t) \quad \text{a.e. } x \in \Omega(T_3) \quad (\ell = 1, 3), \\ a_i(x, T_3) = \lim_{t \uparrow T_3} a_i((\Psi_{3,\ell}(t))(y_x), t) \quad \text{a.e. } x \in \Omega(T_3) \quad (i = 1, 4; \ell = 1, 3), \\ a_i(x, T_3) = \lim_{t \uparrow T_3} a_i((\Psi_{3,\ell}(t))(y_x), t) \quad \text{a.e. } x \in \Omega_3(T_3) \quad (1 \leq i \leq 13; i \neq 1, 4; \ell = 1, 3). \end{array} \right.$$

(5)  $t = T_4$  のとき

(C10)–(C12), (C15)<sub>4</sub> より, 任意の  $x \in \Omega(T_4)$  に対して,

$$x = \Phi_2(z_x)$$

を満たす  $z_x \in \hat{\Omega}_1(T_4) \cup \hat{\Omega}_3(T_4) \cup \Gamma_1(T_4)$  が唯1つ存在する. ここで,  $z_x \notin \Gamma_1(T_4)$  の場合のみを考えれば十分である.

(i)  $x \in \hat{\Omega}_1(T_4)$  のとき,

$$(\Psi_{4,1}(t))(y_x) \longrightarrow \Phi_4^{-1}(x) \quad \text{as } t \uparrow T_4$$

を満たす  $y_x \in \Omega_1(T_3)$  が唯1つ存在する.

(ii)  $x \in \hat{\Omega}_3(T_4)$  のとき,

$$(\Psi_{4,3}(t))(y_x) \longrightarrow \Phi_4^{-1}(x) \quad \text{as } t \uparrow T_4$$

を満たす  $y_x \in \Omega_3(T_3)$  が唯1つ存在する.

この事実を利用して、 $t = T_4$  における初期値を次のように定義する：

$$\left\{ \begin{array}{l} u_i(x, T_4) = \lim_{t \uparrow T_3} u_i((\Psi_{4,\ell}(t))(y_x), t) \quad \text{a.e. } x \in \Omega(T_4) \quad (i = 1, 2, 3; \ell = 1, 3), \\ \theta(x, T_4) = \lim_{t \uparrow T_4} \theta((\Psi_{4,\ell}(t))(y_x), t) \quad \text{a.e. } x \in \Omega(T_4) \quad (\ell = 1, 3), \\ a_i(x, T_4) = \lim_{t \uparrow T_4} a_i((\Psi_{4,\ell}(t))(y_x), t) \quad \text{a.e. } x \in \Omega(T_4) \quad (i = 1, 4; \ell = 1, 3), \\ a_i(x, T_4) = \lim_{t \uparrow T_4} a_i((\Psi_{4,\ell}(t))(y_x), t) \quad \text{a.e. } x \in \Omega_3(T_4) \quad (1 \leq i \leq 13; i \neq 1, 4; \ell = 1, 3). \end{array} \right.$$

## 4 数値計算例

本節では、数値計算例を提示する。我々が提案する数理モデルを用いて数値計算を行う際、 $K_0(\theta)$  で表現される制約条件の取り扱いが大きな問題となる。そこで、本節では  $K_0(\theta)$  が

$$K_0(\theta) = \left\{ (u_1, u_2, u_3) \mid \begin{array}{l} \text{For each } i = 1, 2, 3, \text{ there exists a constant } \bar{u}_i(\theta) > 0 \\ \text{such that } 0 \leq u_i \leq \bar{u}_i(\theta). \end{array} \right\}$$

で与えられる場合についての考察を行う。この制約条件から生じる問題点を回避するために、制約条件をある種の関数で近似した非線形偏微分方程式系に対する数値計算を行った。

実際には、(1)–(3) と (4) を以下の方程式系に置き換えて考察する。ただし、それ以外の方程式については一切変更しない。

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial u_1}{\partial t} = k_1 \Delta u_1 + \left\{ c_1(\theta) \left( 1 - \frac{u_1}{\bar{u}_1(\theta)} \right) - c_2(\theta) \right\} u_1 - c_3 u_2 - c_4 u_3 - c_5 a_9, \\ \frac{\partial u_2}{\partial t} = k_2 \Delta u_2 - c_6 u_1 + \left\{ c_7(\theta) \left( 1 - \frac{u_2}{\bar{u}_2(\theta)} \right) - c_8(\theta) \right\} u_2 - c_9 u_3 - c_{10} a_9, \\ \frac{\partial u_3}{\partial t} = k_3 \Delta u_3 - c_{11} u_1 - c_{12} u_2 + \left\{ c_{13}(\theta) \left( 1 - \frac{u_3}{\bar{u}_3(\theta)} \right) - c_{14}(\theta) \right\} u_3 - c_{15} a_9 - c_{16} a_{13}. \end{array} \right.$$

### 4.1 実際の現象に対応したある条件下での数値結果

上記の近似方程式系に対し、実際の醸造において現れると考えられるいくつかの条件の下で数値実験を行った。方程式中に現れる各要素に関しても、出来る限り実際の現象に現れるものに近付けた。ここでは、そのうち2つの事例に対する結果を紹介する。

#### 4.1.1 事例1 … 熱が過剰に発生する事例

本節では、比較的熱反応が強い設定の下で行った数値実験の結果について簡単に説明する。

図2は事例1の設定下における $\Omega_3(t)$ でのアルコール度数を表現する関数( $J_1(t), J_4(t)$ )の変化を表したグラフである。なお、グラフの開始時間は $t = T_2$ であり、グラフ中の段差の位置で左から順に $t = T_3, t = T_4$ が対応している。

この結果を見ると、アルコール度数が増加していることが確認できる。また、3.3節でも少し触れたように、日本酒醸造においてはアルコール度数に加えてボーメ度が重要視されている。ボーメ度は比重を基にして計算できるので、各成分 $a_i$  ( $i = 1, 2, \dots, 13$ )とその比重を基にしてボーメ度に対応する指標の計算を行い、指標関数の変化を考察した。この結果をグラフにしたものが図3である。このボーメ度指標関数の変化も実際の醸造で見られるのと同様の变化傾向を持つことがわかる。これらの結果から、今回提唱した数理モデルは醸造過程をある程度表現できていると考えることができる。しかし、実際の現象と比較すると、このアルコール度数指標関数の増加は緩やかすぎであり、かつボーメ度指標関数の数値はやや現象とは乖離している。これらの問題は係数調整等によって解決できると考えられるが、今回提唱した数理モデルでは一つの係数の変更が全ての解の挙動に大きな影響を与えてしまうことに注意する必要がある。

図4は本事例における $\Omega_3(t)$ での温度分布 $\theta(x, t)$ の空間に関する積分平均 $\Theta(t)$ を表したグラフである。このグラフからもわかるように、本事例では熱は単調に増加する状態になっている。この熱の過剰発生についても係数等の調整を行うことである程度解決できると考えられるが、単純に熱の発生を抑えても現象に完全には適合しない。

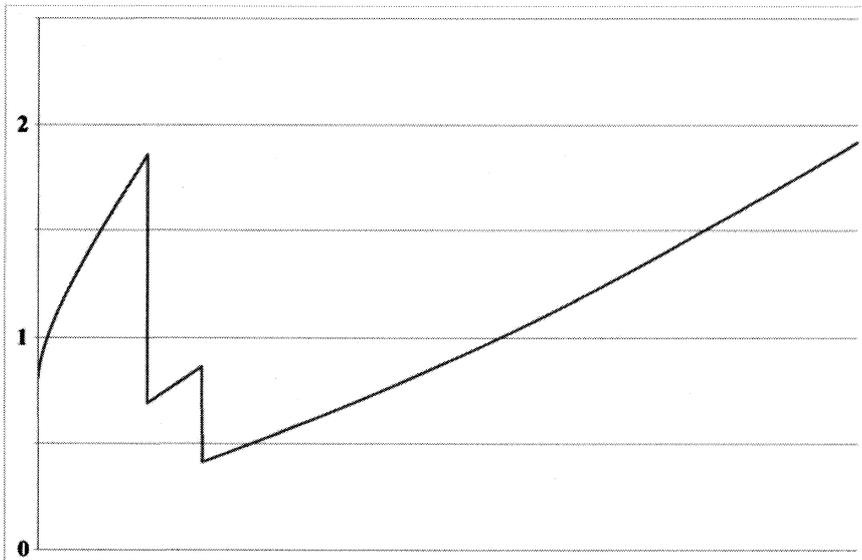


図 2: 事例 1 における  $\Omega_3(t)$  でのアルコール度数指標関数の変化

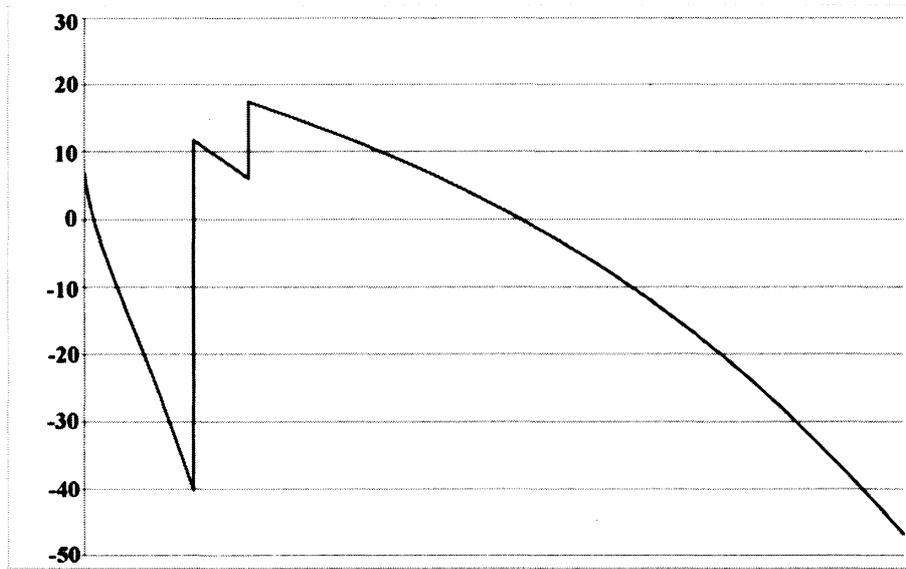


図 3: 事例 1 における  $\Omega_3(t)$  でのボーメ度指標の変化

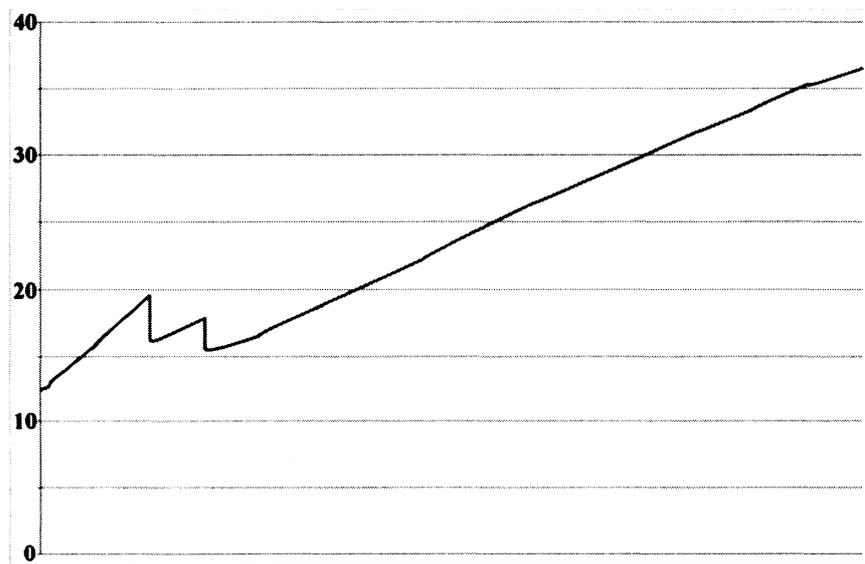


図 4: 事例 1 における  $\Omega_3(t)$  での  $\theta(t)$  の変化

熱の過剰発生は雑菌の過剰繁殖という形で副次的な問題を発生させている。図5はこの事例における  $\Omega_3(t)$  での各菌の集中度について空間に関する積分平均を算出し、その変化を表したグラフである。実際の醸造では雑菌はほぼ抑制されて繁殖しない状態になるが、この事例では熱の過剰発生により雑菌が繁殖しやすい状態となり、雑菌が最優位になっている。実際の醸造では、初添以降では基本的に酵母が最優位であることが望ましいとされるが、本事例の結果では酵母は抑制されてしまっている。このような状況が実際の醸造で起こった場合、醸造は失敗という取り扱いになるので、現象の上ではこの解は意味を持たないことになる。

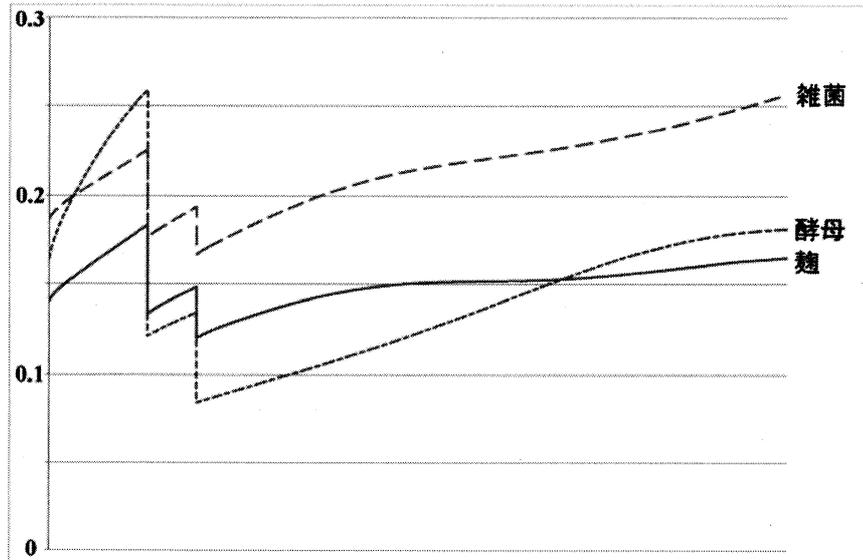


図 5: 事例 1 における  $\Omega_3(t)$  での各菌の集中度平均の変化

#### 4.1.2 事例 2 … 熱の発生を抑制した事例

事例 1 の条件下では熱が過剰に発生することが現象に適合しない原因のひとつとなっていた。そこで、(4) における内部熱源  $h := h(\cdot, \cdot, \cdot)$  の設定等を変更し、事例 1 と比較して熱が発生しにくい設定を構築した上で数値実験を行った。結果として、現象の上でも意味を持つような解が得られた。

図 6 は事例 2 の設定下におけるアルコール度数を表現する関数の変化を表したグラフである。グラフを見ると、事例 1 の結果と比較して  $a_9$  が増加する反応が進むようになっていることがわかる。また、本事例における  $\Omega_3(t)$  での  $\Theta(t)$  の変化は図 7 のようになっており、事例 1 と比較して  $\Theta(t)$  の増加が抑制されている。その結果、 $u_1$  と  $u_2$  は比較的増加しやすく、 $u_3$  は比較的増加しにくくなり、図 8 にあるように酵母優位の状態が保たれた。このことが  $a_9$  が増加する反応を促進する要因となったと考えられる。

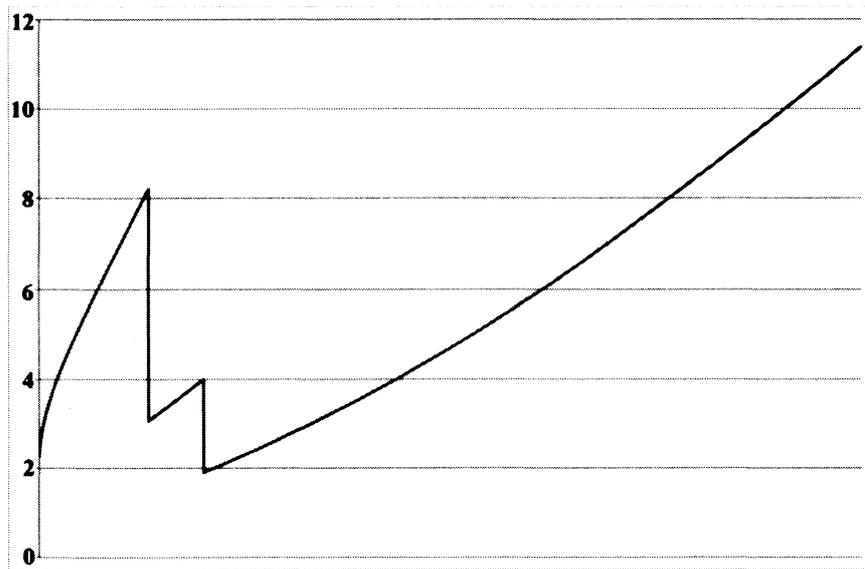


図 6: 事例 2 における  $\Omega_3(t)$  でのアルコール度数指標関数の変化

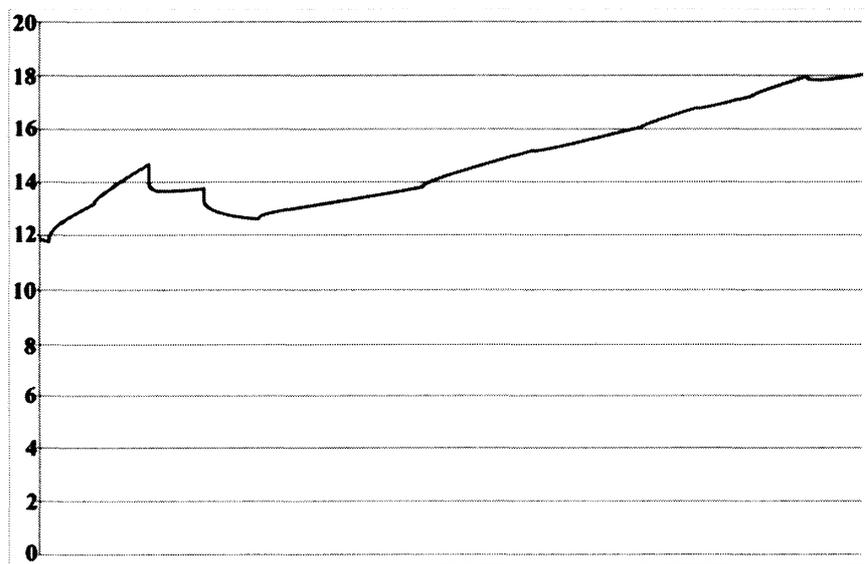


図 7: 事例 2 における  $\Omega_3(t)$  での  $\theta(t)$  の変化

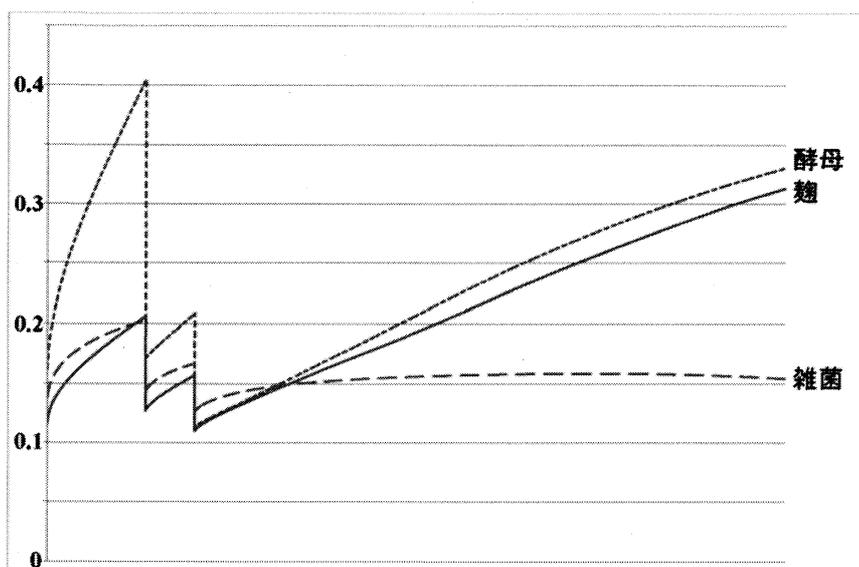


図 8: 事例 2 における  $\Omega_3(t)$  での各菌の集中度平均の変化

事例 2 の結果は、事例 1 の結果と比較して各種要素の変化の傾向が実際の現象に近くなっている。しかし、その度合いについては実際に確認されている現象と比べてまだ十分に近いとは言い難い状態にある。更に、事例 2 においては各要素の総和が一定の量を超えてしまったことにより、ボーム度指標の計算に困難が発生している。この点については係数調整や指標の計算方法を改善するだけでなく、制限条件に各要素の総和を一定に抑える効果を加えるなどの改善が必要となる可能性がある。

## 参考文献

- [1] 増補改訂 最新酒造講本; (財) 日本醸造協会 (2007)
- [2] R. Kano, Y. Murase and N. Kenmochi, Nonlinear evolution equations generated by sub-differentials with nonlocal constraints, Banach Center Publications, Inst. Math. Polish Acad. Sci., 86 (2009), 175-194.