

学位論文の要旨

氏名

大谷武人

学位論文題目

製糖地域で用いるための廃糖蜜中有価成分の回収と資源化法に関する研究

本論文は、製糖地域における製糖副産物である廃糖蜜から有価成分を回収および資源化する方法に関する研究をまとめたものである。

第1章は、日本国内外の製糖産業の現状と課題をまとめた。製糖副産物としてバガス、廃糖蜜、マッドケーキの特徴と含有成分および利用可能性、日本の製糖および副産物利用の現状と課題を述べた。特に廃糖蜜について、主成分であるショ糖とカリウムに着目し、これらの分離・抽出に関する先行研究を調査した。本研究では、鹿児島県で産出されるサトウキビ廃糖蜜の組成に適合すること、さらに主な産地である離島で実現可能な方法であることを条件として、廃糖蜜から有価成分であるカリウムとショ糖の回収に貢献する技術を開発することを目的にする。

第2章は、鹿児島産のサトウキビ廃糖蜜中の無機成分で最も多く含まれるカリウムを肥料として利用すべく、カリウムの回収方法および資源化に関する検討を行った。先行研究では、イオン交換や溶媒抽出法を用いるのが一般的であるが、これらの方法は、廃糖蜜に加水して高倍率で希釈し、カリウムを液状で回収するが、肥料としては利用しにくい。そのため、カリウム含有固体として回収するのが望ましい。廃糖蜜を加水して希釈した際に発生する固体沈殿物の分析から、沈殿がシングナイト ($\text{CaK}_2(\text{SO}_4)_2$) というカリウム含有固体であることがわかった。そこで、シングナイト生成量を増やすための添加物に着目し、硫酸とカルシウム塩の添加が有効であることを見出した。添加量と添加方法を二段階として最適化することで、鹿児島県のある製糖工場の廃糖蜜から、合計で74%のカリウムを回収することができた。この手法は鹿児島県および沖縄県産の8工場の廃糖蜜すべてに対して70%を超えるカリウムの回収率を得た。

第3章では廃糖蜜の主成分であるショ糖の回収方法について検討を行った。先行研究で報告されているものの、実用化例のない溶媒抽出に着目した。先行研究ではメタノールなど食品利用には適さない溶媒であったため、エタノールを用いたところ、穏やかに攪拌した場合のみで、白濁した第三層が得られた。白濁はショ糖結晶であることがわかった。これより、第三層を形成して回収することによる高純度でのショ糖回収の手法を提案した。ビーカー試験での結果から、十分に大きい体積で第三層を形成するには、装置における工夫として希釈糖蜜を循環して供給する必要があることがわかった。開発した装置で2時間運転を行うことで、希釈糖蜜中のショ糖の40%を回収でき、ショ糖純度は74%に達した。

この装置内でショ糖が希釈糖蜜からエタノールとの間で形成される第三層へ移動する挙動について、物質移動モデルを適用して考察した。第三層中のショ糖濃度分布の変化を実測して、物質移動の浸透モデルと移流拡散モデルによる濃度分布の予測を試みた。結果として浸透モデルでは予測できず、移流拡散モデルにより第三層の一部での濃度変化が予測できることがわかった。実測値から、希釈糖蜜からの水の移動や希釈糖蜜循環路のジェットによる混合がショ糖の濃度分布に影響を与えていることが示された。

第4章では、本研究で開発したカリウムに対する二段階沈殿法と、エタノールを用いたショ糖回収法を同時に実装する場合のプロセス構成について検討を行った。廃糖蜜を原料として二つの方法を直列で実施するには、初めにショ糖回収を行った後に二段階沈殿法を適用してカリウムを回収するのが望ましく、実験でその有用性を確かめた。

第5章には、各章で行った研究のまとめを示すとともに、製糖工場への社会実装を目指した技術を提案した。さらに本研究が将来の製糖産業に対してどのように貢献できるかについて述べた。

Summary of Doctoral Dissertation

Title of Doctoral Dissertation:

A study on the recovery and resource production methods of valuable components in sugarcane molasses for use in sugar-producing regions

Name: OTANI Taketo

This paper summarizes studies on methods for recovering and resourcing valuable components from sugarcane molasses, a by-product of sugar production.

Chapter 1 provides an overview of the current status and challenges in the sugar industry both in Japan and internationally. It discusses the characteristics and components of sugar by-products such as bagasse, molasses, and mud cake, as well as their potential uses. The chapter also explores the current status and challenges of sugar production and by-product utilization in Japan. With a specific focus on molasses, the chapter investigates past research on the separation and extraction of its main components, sucrose, and potassium. This research aims to develop technology that contributes to the recovery of valuable components, potassium, and sucrose, from molasses, with a focus on adapting to the composition of sugarcane molasses produced in Kagoshima Prefecture and ensuring feasibility in remote islands, which are major production areas.

Chapter 2 focuses on the study of potassium recovery methods and resource utilization from sugarcane molasses produced in Kagoshima, with the aim of using potassium as a fertilizer. In past studies, common methods for potassium recovery involved ion exchange and solvent extraction. However, these methods often included dilution of molasses with water at high ratios to recover potassium in liquid form, making it less suitable for use as a fertilizer. Therefore, the study emphasizes the recovery of potassium as a solid substance to enhance its availability as a fertilizer. Analysis of the solid precipitate generated when diluting molasses with water revealed that the precipitate consists of potassium-containing solid, specifically identified as syngenite ($\text{CaK}_2(\text{SO}_4)_2$). Consequently, the study focused on additives to increase the syngenite formation, finding that the addition of sulfuric acid and calcium salt is effective for this purpose. By optimizing both the amount and method of additives in a two-step process, it was possible to recover a total of 74% of potassium from molasses at a sugar refinery in Kagoshima Prefecture. This method achieved a potassium recovery ratio exceeding 70% for molasses from all eight factories in Kagoshima and Okinawa prefectures.

Chapter 3 focused on sucrose, the main component of molasses, and examined methods for recovering sucrose that contributes to sugar production efficiency. In contrast to the sucrose recovery methods used in past studies, we tested the feasibility of adapting a solvent extraction method using organic solvents to recover sucrose with less dilution water and fewer requirements for materials. Methanol and other solvents used in past studies were unsuitable for food use. Therefore, we attempted to use ethanol for solvent extraction and found that a cloudy third layer was obtained only at gentle agitation at the interface between the diluted molasses and ethanol. The presence of sucrose crystals was revealed by observation and analysis of this third layer.

Based on these findings, we designed the apparatus of beaker-scale based on the idea that pure sucrose was successfully recovered by taking out the third layer. The results of the beaker-scale experiment for the formation of the third layer indicate that adding a dilute molasses circulation loop is necessary to recover a third layer containing high purity sucrose. By operating the present experimental setup for two hours, 40% of the sucrose in the diluted molasses was successfully recovered, and its sucrose purity was as high as 74%.

The behavior of sucrose transfer from diluted molasses to the third layer formed with ethanol within this apparatus was examined using a mass-transfer model. By measuring changes in the sucrose concentration distribution within the third layer, an attempt was made to predict the concentration distribution using both a penetration model and an axial mixing model. As a result, the penetration model gave poor predictions, but the axial mixing model succeeded in predicting sucrose concentration in a part of the third layer. The experimental data indicated that the transfer of water from diluted molasses to the third layer and mixing due to the jet of diluted molasses in the third layer affected to the sucrose transfer inside the third layer.

In Chapter 4, investigated was the process configuration for implementing the two-stage precipitation method for potassium recovery and the sucrose recovery method using ethanol developed in this research. To enhance the performance of both methods, it is preferable to first recover sucrose and then apply the two-stage precipitation method to recover potassium. The advantage of this sequential approach was confirmed through experiments.

Chapter 5 serves as a conclusion, summarizing the research in each chapter. Furthermore, technologies were proposed for the implementation of the findings in sugar refineries. The chapter also discusses how this research contributes to the future of the sugar industry.