

청정생산기술사업 최종보고서

편집순서 1

- ※ 다음 순서에 따라 작성하여 210 X 297mm 크기의 용지에 별책으로 제출함
- ※ 표지는 백색바탕, 흑색활자로 작성 (좌철, 양면)

뒷면		앞면
<p>이 보고서는 산업 자원부에서 시행한 청정생산기술사업 의 보고서입니다. (뒷면중앙에 표기)</p>	<p>○ ○ ○ ○ ○ ○ ○ ○ ○ ○ ○ ○ ○ ○ ○ ○</p> <p>산 업 자 원 부</p>	<p><u>반응증류에 의한 Dimethyl Carbonate</u> <u>연속제조공정개발</u> Process Development for the Continuous Production of Dimethyl Carbonate by Reactive Distillation (최종보고서) 20004 . 11. 주관기관 한국과학기술연구원 위탁기관 고려대학교 산업자원부</p>

제 출 문

한국생산기술연구원장 귀하

본 보고서를 “반응증류에 의한 Dimethyl Carbonate 연속제조공정개발” 사업 (사업기간 : 2001 . 10. 1 ~ 2004. 9. 30)의 최종보고서로 제출합니다.

2004 . 11 . 30 .

주관기관명 : 한국과학기술연구원

주관책임자 : 안 병 성(반응매체연구센터, 책임연구원)

연 구 원 : 박건유(초빙연구위원), 김훈식(책임연구원), 이상득(책임연구원),
최대기(책임연구원), 이병권(책임연구원), 김홍곤(책임연구원),
문동주(선임연구원), 이현주(연 구 원), 유계상(연 구 원),
공경택(연 구 원), 이재우(책임기사), 홍종엽(책임기사),
임형식(책임기사), 한만석(위촉연구원), Haznan(IR&D 학생),
이윤주(연 수 생), 김태호(연 수 생), 정용화(연 수 생)

위탁연구기관 : 고려대학교, 화공생명공학과

연구책임자 : 양대륙(교수)

연구원 : 이태철, 장용희

최종보고서 초록

세부사업명	(국문) 반응증류에 의한 Dimethyl Carbonate 연속제조공정개발 (영문) Process Development for the Continuous Production of Dimethyl Carbonate by Reactive Distillation		
주관기관	한국과학기술연구원	주관책임자	안 병 성
총사업기간	2001 . 10 . 1 . ~ 2004 . 9 . 30 . (3 년)		
당해연도 사업기간	2003 . 10 . 1 . ~ 2004 . 9 . 30 . (1 년)		
총사업비 (천원)	정부출연금 : 535,413	민간부담금 : 0	계 : 535,413
참여기업			
협력기관			
주제어 (6~10 개)	디메틸카보네이트, 반응증류, 에틸렌카보네이트, 에틸렌글리콜 병산상용공정, 기본설계		
<p>1. 최종(당해) 목표</p> <p>Ethylene carbonate와 메탄올을 반응시켜 dimethyl carbonate를 제조하는데 있어서 반응증류방법을 사용한 공정을 개발하고 상용규모(년산 500톤) 생산설비의 화공 기본설계를 작성한다.</p> <p>2. 사업의 목적 및 중요성</p> <p>Dimethyl carbonate(DMC)는 상온에서 무색, 무취의 액상화합물로 최근 ‘환경친화적 화학제품’의 하나로 많은 주목을 받고 있다. DMC는 이차전지의 전해액으로 사용되고 있으며 폴리카보네이트의 중간원료로서 phosgene을 대체할 수 있는 화합물이다. 또한 carbonylation이나 methylation 반응에 필요한 염화메틸, 디메틸황산과 같은 기존 독성원료를 대체할 수 있는 환경친화적 화합물이다.</p> <p>Ethylene carbonate(EC)과 메탄올의 에스테르교환반응(transesterification)에 의한 dimethyl carbonate 제조에 있어서 반응증류방법을 사용하면 반응기에서의 평형전환율을 극복하여 월등한 전환율을 얻을 수 있고 반응열을 활용하는 환경친화적인 청정공정을 확립할 수 있다.</p>			

최종보고서 초록(계속)

3. 사업의 내용 및 범위

	연도별 사업 목표 및 사업내용	평가항목 · 기준
1차 년도	<ul style="list-style-type: none"> - 반응실험 : 촉매선정 및 반응실험, 반응속도식 확인, - 분리성능 확인 : 각 성분 기-액 평형자료 확인 - 반응증류장치 구성 : 1 kg/hr DMC 제조 반응증류장치 설치 - 연구결과 공개발표(세미나 혹은 workshop) 	<ul style="list-style-type: none"> - 반응증류장치설치 및 실험 : 원료(EC)의 전환율 95% 이상 및 선택도 98% 이상
2차 년도	<ul style="list-style-type: none"> - 반응증류실험 : 장치보완 및 실험, 실험결과해석 및 검토 - 반응증류공정 공정모사 : 반응을 동반한 증류탑의 모델링 및 모사화 - 반응증류공정 제어시스템 설계 : 운전범위 확인 및 robust control - 연구결과 공개발표(세미나 혹은 workshop) 	<ul style="list-style-type: none"> - 상용 simulator에 적용한 반응증류 공정의 모사화 결과와 실험결과 비교, 분석 결과 - 적정 제어시스템 설계와 dynamic response 결과
3차 년도	<ul style="list-style-type: none"> - 반응증류공정 개발 : 상용공정 개발 - 상용설비 기본설계 : 반응증류 장치설계 및 부속설비 선정,공정도 작성, 계장, 배관 사양서 작성 	<ul style="list-style-type: none"> - 반응증류공정을 적용한 년산 500톤 규모의 DMC 생산설비 기본설계서

4. 사업 결과

- Workshop 개최 : 2회(반응증류기술 Workshop 2002/9/13,
반응증류공정개발 과제결과발표 2003/9/19)
- 결과물 전시 : 1회(대한민국 기술대전 2003/10/17 ~ 10/21
- 반응증류에 의한 Dimethyl Carbonate 제조)
- 국내외 학회발표 : 12편(국내 8편, 국외 4편)
- 논문제출 : 국내 1편(게재), 국외 4편(SCI 4편, 2편 게재, 2편 제출)
- 특허출원 : 3건(한국 : 2002-0064268, 2003-0080582, 2004-0089454)

5. 기대효과

- 환경개선 효과 : 환경친화 화합물인 dimethyl carbonate(DMC) 제조 상용공정(년산 500톤
규모 생산설비)을 개발. DMC에 의한 non-phosgene 공정 도입을 촉진
- 경제적 기대 효과 : ethylene carbonate(EC)의 전환율을 반응평형 전환율(원료 조성비
메탄올/EC = 4일 때, 35%)에서 반응증류공정 도입에 의해 95% 이상으로 향상시키고
선택도를 98% 이상으로 생산성을 높임. 반응열이 증류탑 내에서 회수될 수 있도록 하
여 에너지 효율을 최대화.

Abstract

1. Final Goal

Development of process for manufacturing dimethyl carbonate by reactive distillation using ethylene carbonate and methanol and preparation of the preliminary basic design for 500 MTon/Year dimethyl carbonate production

2. Project purpose and importance

Dimethyl carbonate(DMC) has recently received attraction as an environmental benign chemical due to its non-toxic and harmless properties at room temperature. DMC has been utilized for the electrolyte of secondary battery and intimate material of polycarbonate as an alternative of phosgene. Furthermore, DMC can be replaced with toxic materials such as methyl-chloride and dimethyl-sulfuric acid for carbonylation and methylation reactions.

Reactive distillation process for manufacturing dimethyl carbonate by transesterification with ethylene carbonate and methanol can achieve higher conversion by solving the limitation of equilibrium conversion. Moreover, the reactive distillation is clean process to recover the heat energy during the reaction.

3. Project content and scope

	Project Goal and Achievement	Evaluation
1st year	<ul style="list-style-type: none"> - Reaction experiment : Catalyst screening and experiment, Investigation of reaction kinetics. - Separation test : Investigation of vapor- liquid equilibrium data for each component - Reactive distillation setup : 1 kg/hr DMC scale - Presenting results (seminar or workshop) 	<ul style="list-style-type: none"> - Reactive distillation setup and experiment : EC conversion 95% and selectivity 98%
2nd year	<ul style="list-style-type: none"> - Reactive distillation : instrument innovation and experiments, data analysis and discussion - Process simulation : modeling and simulation of reactive distillation tower - Design of process control system : operation condition checkup and robust control - Presenting results (seminar or workshop) 	<ul style="list-style-type: none"> - Comparison and analysis of experimental data and commercial simulator data - control system and dynamic response results
3rd year	<ul style="list-style-type: none"> - Reactive distillation : development of commercial process - Design for commercial equipments : Reactive distillation design, accessories selection, process design, instrumentation and pipe. 	<ul style="list-style-type: none"> - Basic design for 500 MT/Y DMC production

4. Achievement

- Workshop : 2 times (Reactive distillation technology workshop 2002/9/13, Project result presentation for reactive distillation process 2003/9/19)
- Exhibition : 1 time (NEWTECH KOREA 2003/10/17 ~21 - Production of dimethyl carbonate by reactive distillation)
- Conference : 12 times (domestic 8, international 4)
- Journal : Domestic 1 (published), International (SCI) 4 (2 published, 2 submitted)
- Patent : 3 (Korea: 2002-0064268, 2003-0080582, 2004-0089454)

5. Effect

- Environmental : Development of commercial process (500 MT/Y) for dimethyl carbonate (DMC) as an environmental friendly chemical. Introduction of non-phosgene process by DMC.
- Economical : Improvement of productivity for DMC by increasing ethylene carbonate (EC) conversion from 35% to 95% and selectivity of DMC (over 98%) using reactive distillation process. Maximizing energy efficiency by recovery of reaction heat in the distillation tower.