



(19) 대한민국특허청(KR)  
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2015년05월13일  
(11) 등록번호 10-1519361  
(24) 등록일자 2015년05월06일

- |   |  |
|---|--|
| <p>(51) 국제특허분류(Int. Cl.)<br/>C07C 67/333 (2006.01) B01J 23/72 (2006.01)<br/>B01J 4/00 (2006.01) C07C 69/96 (2006.01)</p> <p>(21) 출원번호 10-2013-0047309</p> <p>(22) 출원일자 2013년04월29일<br/>심사청구일자 2013년04월29일</p> <p>(65) 공개번호 10-2014-0128646</p> <p>(43) 공개일자 2014년11월06일</p> <p>(56) 선행기술조사문헌<br/>KR1020120053308 A<br/>JP3412079 B2<br/>JP2767146 B2<br/>JP06218284 A</p> | <p>(73) 특허권자<br/>한국화학연구원<br/>대전광역시 유성구 가정로 141 (장동)</p> <p>(72) 발명자<br/>안성현<br/>대전광역시 유성구 노은서로210번길 32 열매마을<br/>4단지아파트 409동 1801호</p> <p>남정광<br/>경상남도 양산시 웅상대로 866 대승하이아트아파트 105동 303호<br/>(뒷면에 계속)</p> <p>(74) 대리인<br/>한라특허법인</p> |
|---|--|

전체 청구항 수 : 총 8 항

심사관 : 김지은

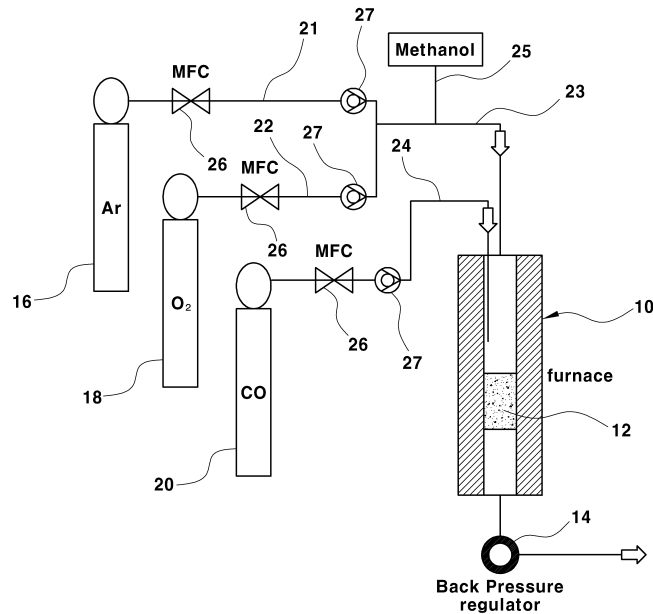
(54) 발명의 명칭 메탄올의 산화성 카르보닐화 반응에 의한 디메틸카보네이트 제조 장치 및 방법

(57) 요약

본 발명은 메탄올의 산화성 카르보닐화 반응에 의한 디메틸카보네이트 제조 장치 및 방법에 관한 것으로서, 더욱 상세하게는 디메틸카보네이트 합성 수율을 향상시킬 수 있도록 한 메탄올의 산화성 카르보닐화 반응에 의한 디메틸카보네이트 제조 장치 및 방법에 관한 것이다.

(뒷면에 계속)

대표도 - 도1



즉, 본 발명은 기상 고정층 연속흐름 반응기에 메탄올, 일산화탄소, 산소, 불활성기체(알곤, 질소)를 동시에 주입하는 통상적인 반응시스템을 개선하되, 디메틸카보네이트 반응 메카니즘에 따라 원료 주입 라인을 변경하는 개선을 통하여, 메탄올, 산소, 불활성기체를 같이 주입하고 일산화탄소를 별도로 반응기 내부에 주입할 수 있도록 함으로써, 메탄올, 일산화탄소, 산소, 불활성기체(알곤, 질소)를 동시에 주입하는 통상적인 반응시스템에 비하여 디메틸카보네이트 합성 수율을 향상시킬 수 있는 메탄올의 산화성 카르보닐화 반응에 의한 디메틸카보네이트 제조 장치 및 방법을 제공하고자 한 것이다.

(72) 발명자

**조득희**

대전광역시 서구 월평선사로 11 무지개아파트 103동 702호

**김현국**

울산광역시 울주군 범서읍 구영로 75-26 풍경채아파트 103동 303호

**김성보**

대전광역시 유성구 배울2로 78 운암아파트 604동 304호

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호	R0000654
부처명	지식경제부
연구관리전문기관	한국산업기술진흥원
연구사업명	광역경제권연계협력사업
연구과제명	친환경 디메틸카보네이트 제조기술 개발
기여율	1/1
주관기관	한국화학연구원
연구기간	2010.07.01 ~ 2013.04.30

---

**명세서**

**청구범위**

**청구항 1**

촉매(12)가 충전되고 온도 조절수단이 내설된 반응기(10)와, 반응기(10)에 불활성기체를 공급하기 위한 불활성기체 저장탱크(16)와, 반응기(10)에 산소를 공급하기 위한 산소 저장탱크(18)와, 반응기(10)에 일산화탄소를 공급하기 위한 일산화탄소 저장탱크(20)를 포함하는 메탄올의 산화성 카르보닐화 반응에 의한 디메틸카보네이트 제조 장치에 있어서,

상기 불활성기체 저장탱크(16)의 출구로부터 연장된 제1공급라인(21)과 상기 산소 저장탱크(18)의 출구로부터 연장된 제2공급라인(22)이 제3공급라인(23)에 의하여 하나로 합쳐져서 반응기(10)에 함께 연결되고,

상기 제3공급라인(23)에는 반응기(10)에 메탄올을 주입하기 위한 메탄올 주입라인(25)이 연결되며,

상기 일산화탄소 저장탱크(20)의 출구로부터 연장된 제4공급라인(24)이 독립적인 공급라인을 이루면서 반응기(10)에 별도로 연결된 것을 특징으로 하는 메탄올의 산화성 카르보닐화 반응에 의한 디메틸카보네이트 제조 장치.

**청구항 2**

청구항 1에 있어서,

상기 촉매(12)는 담지체에  $Cu^+$  또는  $Cu^{2+}$ 의 구리이온이 담지된 구리 담지촉매로 채택된 것임을 특징으로 하는 메탄올의 산화성 카르보닐화 반응에 의한 디메틸카보네이트 제조 장치.

**청구항 3**

청구항 1 또는 청구항 2에 있어서,

상기 반응기(10)내의 촉매(12) 전후 위치에 촉매 유실 방지를 위한 유리섬유 또는 철망이 부착된 것을 특징으로 하는 메탄올의 산화성 카르보닐화 반응에 의한 디메틸카보네이트 제조 장치.

**청구항 4**

청구항 1에 있어서,

상기 제4공급라인(24)은 일산화탄소를 반응기로 별도 공급하기 위한 라인으로서, 반응기(10)의 하향식 흐름 구조에서는 전체길이 중 촉매에 닿지 않는 상부 10~50% 위치, 상향식 흐름 구조에서는 전체길이 중 촉매에 닿지 않는 하부 10~50% 위치까지 연장되는 것을 특징으로 하는 메탄올의 산화성 카르보닐화 반응에 의한 디메틸카보네이트 제조 장치.

**청구항 5**

청구항 1에 있어서,

상기 제1공급라인(21)을 비롯한 제2공급라인(22)과 제4공급라인(24)에는 각각 기체 흐름 조절장치(26)가 장착된 것을 특징으로 하는 메탄올의 산화성 카르보닐화 반응에 의한 디메틸카보네이트 제조 장치.

**청구항 6**

청구항 1에 있어서,

상기 반응기(10)의 하단 출구에는 반응기의 내부 압력을 조절하는 역압 조절장치(14)가 장착된 것을 특징으로 하는 메탄올의 산화성 카르보닐화 반응에 의한 디메틸카보네이트 제조 장치.

**청구항 7**

반응기(10)에 Cu-담지 촉매(12)가 충전된 상태에서, 반응기의 내부온도를 승온시키는 단계와;

상기 반응기(10)에 불활성기체와 산소, 그리고 메탄올을 함께 공급하는 단계와;

상기 반응기(10)에 일산화탄소를 별도의 공급라인을 통하여 독립적으로 공급하는 단계;

를 통하여, 반응기내에서 메탄올의 산화성 카르보닐화 반응에 의거 디메틸카보네이트가 제조되도록 한 것을 특징으로 하는 메탄올의 산화성 카르보닐화 반응에 의한 디메틸카보네이트 제조 방법.

**청구항 8**

삭제

**청구항 9**

청구항 7에 있어서,

상기 반응기(10)내의 압력을 조절하는 단계를 더 포함하는 것을 특징으로 하는 메탄올의 산화성 카르보닐화 반응에 의한 디메틸카보네이트 제조 방법.

**발명의 설명**

**기술분야**

[0001] 본 발명은 메탄올의 산화성 카르보닐화 반응에 의한 디메틸카보네이트 제조 장치 및 방법에 관한 것으로서, 더욱 상세하게는 디메틸카보네이트 합성 수율을 향상시킬 수 있도록 한 메탄올의 산화성 카르보닐화 반응에 의한 디메틸카보네이트 제조 장치 및 방법에 관한 것이다.

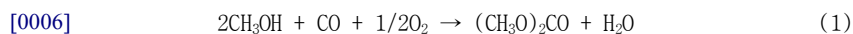
**배경기술**

[0002] 일반적으로, 디메틸카보네이트(DMC, Dimethyl Carbonate)는 산소 함량이 53%로 높고, 가솔린과 잘 희석되며, 또한 인체에 무해하고, 물에 잘 용해되지 않기 때문에 내연기관의 공해 저감을 위한 옥탄가 향상제로 사용되고 있다.

[0003] 또한, 상기 디메틸카보네이트(DMC)는 잠재적 지하수 오염원인 MTBE(methyl tertiarybutyl ether)의 대체 물질로서, 또는 메틸알라이드나 디메틸설페이트와 같은 메틸화제의 대체 물질로도 고려되고 있고, 그 밖에도 폴리우레탄 수지의 제조, 의약 및 농약의 중간체 합성과 전자부품 산업, 그리고 정밀화학 및 자동차 산업 분야에도 광범위하게 적용되고 있다.

[0004] 이와 같이, 상기 디메틸카보네이트(DMC)는 친환경 소재로서 광범위한 산업분야에서 이용되고 있다.

[0005] 상기 디메틸카보네이트(DMC)의 메탄올 산화 카르보닐화 제조방법은 하기 반응식 (1)에 나타난 바와 같이, 메탄올, 일산화탄소 그리고 산소를 반응물로 하여 디메틸카보네이트(DMC)를 제조하는 반응으로, 가장 환경 친화적인 방법으로 많은 관심의 대상이 되고 있다.



[0007] 상기한 메탄올 산화 카르보닐화 제조방법은 구리 염화물과 같은 구리촉매 하에서 메탄올의 카르보닐화 반응에

의하여 진행되고, 산화반응이 수반되기 때문에 산화성 카르보닐화 반응이라고 불리어지고 있다.

- [0008] 전통적인 메탄올의 산화성 카르보닐화 반응에서는 CuCl 또는 CuCl<sub>2</sub>와 같은 구리 염화물을 촉매로 사용하거나, CuCl 또는 CuCl<sub>2</sub>를 담지체에 담지시킨 담지촉매를 사용하고 있다.
- [0009] 상기 메탄올 산화 카르보닐화 제조방법은 크게 액상반응과 기상반응으로 나누어지고 있지만, 액상 방식은 촉매의 염화물이 용해되어서 부식성이 강한 용액을 생성함으로써 반응기 내부를 부식시키는 부작용을 일으키는 단점이 있다.
- [0010] 이러한 단점을 극복하기 위해 담지촉매를 이용해 액상반응이 아닌 기상반응을 통한 디메틸카보네이트의 제조방법이 필요하게 되었다.

**발명의 내용**

**해결하려는 과제**

- [0011] 이에, 본 발명은 회분식 액상 반응시스템에서 반응기 내부에 산소와 일산화탄소의 주입 순서에 따라 디메틸카보네이트 합성 수율 결과가 다르게 나온다는 사실에 착안하여 안출한 것으로서, 기상 고정층 연속흐름 반응기에 메탄올, 일산화탄소, 산소, 불활성기체(알곤, 질소)를 동시에 주입하는 통상적인 반응시스템을 개선하되, 디메틸카보네이트 반응 메카니즘에 따라 원료 주입 라인을 변경하는 개선을 통하여, 메탄올, 산소, 불활성기체를 같이 주입하고 일산화탄소를 별도로 반응기 내부에 주입할 수 있도록 함으로써, 메탄올, 일산화탄소, 산소, 불활성기체(알곤, 질소)를 동시에 주입하는 통상적인 반응시스템에 비하여 디메틸카보네이트 합성 수율을 향상시킬 수 있는 메탄올의 산화성 카르보닐화 반응에 의한 디메틸카보네이트 제조 장치 및 방법을 제공하는데 그 목적이 있다.

**과제의 해결 수단**

- [0012] 상기한 목적을 달성하기 위한 본 발명의 메탄올의 산화성 카르보닐화 반응에 의한 디메틸카보네이트 제조 장치는: 촉매가 충전되고 온도 조절수단이 내설된 반응기와, 반응기에 불활성기체를 공급하기 위한 불활성기체 저장탱크와, 반응기에 산소를 공급하기 위한 산소 저장탱크와, 반응기에 일산화탄소를 공급하기 위한 일산화탄소 저장탱크를 포함하되, 상기 불활성기체 저장탱크의 출구로부터 연장된 제1공급라인과 상기 산소 저장탱크의 출구로부터 연장된 제2공급라인이 제3공급라인에 의하여 하나로 합쳐져서 반응기에 함께 연결되고, 상기 제3공급라인에는 반응기에 메탄올을 주입하기 위한 메탄올 주입라인이 연결되며, 상기 일산화탄소 저장탱크의 출구로부터 연장된 제4공급라인이 독립적인 공급라인을 이루면서 반응기에 별도로 연결된 것을 특징으로 한다.
- [0013] 바람직한 구현예로서, 상기 촉매는 담지체에 Cu<sup>+</sup> 또는 Cu<sup>2+</sup>의 구리이온이 담지된 구리 담지촉매로 채택된 것임을 특징으로 한다.
- [0014] 더욱 바람직하게는, 상기 반응기내의 촉매 전후 위치에 촉매 유실 방지를 위한 유리섬유 또는 철망이 부착된 것을 특징으로 한다.
- [0015] 특히, 상기 제4공급라인은 일산화탄소를 반응기로 별도 공급하기 위한 라인으로서, 반응기의 하향식 흐름 구조에서는 전체길이 중 촉매에 닿지 않는 상부 10~50% 위치, 상향식 흐름 구조에서는 전체길이 중 촉매에 닿지 않는 하부 10~50% 위치까지 연장되는 것을 특징으로 한다.
- [0016] 또한, 상기 제1공급라인을 비롯한 제2공급라인과 제4공급라인에는 각각 기체 흐름 조절장치가 장착된 것을 특징으로 한다.
- [0017] 또한, 상기 반응기의 하단 출구에는 반응기의 내부 압력을 조절하는 역압 조절장치가 장착된 것을 특징으로 한다.
- [0018] 상기한 목적을 달성하기 위한 본 발명의 메탄올의 산화성 카르보닐화 반응에 의한 디메틸카보네이트 제조 방법은: 반응기에 Cu-담지 촉매(12)가 충전된 상태에서, 반응기의 내부온도를 승온시키는 단계와; 상기 반응기에 불활성기체와 산소, 그리고 메탄올을 함께 공급하는 단계와; 상기 반응기에 일산화탄소를 별도의 공급라인을 통해

여 독립적으로 공급하는 단계; 를 통하여, 반응기내에서 메탄올의 산화성 카르보닐화 반응에 의거 디메틸카보네이트가 제조되도록 한 것을 특징으로 한다.

- [0019] 바람직한 구현예로서, 상기 메탄올 : 일산화탄소 : 불활성기체 : 산소는 4 : 4 이상 : 2 이상 : 1 의 비율로 조절되어, 반응기로 공급되는 것을 특징으로 한다.
- [0020] 또한, 상기 반응기내의 압력을 조절하는 단계를 더 포함하는 것을 특징으로 한다.

**발명의 효과**

- [0021] 상기한 과제 해결 수단을 통하여, 본 발명은 다음과 같은 효과를 제공한다.
- [0022] 본 발명에 따르면, 디메틸카보네이트 제조를 위한 원료 투입 라인 및 방법을 개선하여, 기체상 메탄올의 산화성 카르보닐화 반응에 사용되어 메탄올의 전환율과 디메틸카보네이트의 수율을 높이는 효과를 제공한다.
- [0023] 즉, 반응기 내부에 산소와 일산화탄소의 주입 순서에 따라 디메틸카보네이트 합성 수율 결과가 다르게 나온다는 사실에 착안하여, 원료 주입 라인을 메탄올, 산소, 불활성기체를 같이 반응기에 주입하고, 일산화탄소를 별도로 반응기에 주입할 수 있는 구조로 개선함으로써, 메탄올, 일산화탄소, 산소, 불활성기체(알곤, 질소)를 동시에 주입하는 통상적인 반응시스템에 비하여 디메틸카보네이트 합성 수율을 향상시킬 수 있다.
- [0024] 또한, 반응기내의 Cu-담지촉매는 부식성 가스를 발생시키지 않으므로, 금속재질의 반응기에서 유용하게 사용할 수 있다.

**도면의 간단한 설명**

- [0025] 도 1은 본 발명의 일 실시예에 따른 메탄올의 산화성 카르보닐화 반응에 의한 디메틸카보네이트 제조 장치를 나타내는 구성도,
- 도 2는 본 발명의 다른 실시예에 따른 메탄올의 산화성 카르보닐화 반응에 의한 디메틸카보네이트 제조 장치를 나타내는 구성도.

**발명을 실시하기 위한 구체적인 내용**

- [0026] 이하, 본 발명의 바람직한 실시예를 첨부도면을 참조로 상세하게 설명하기로 한다.
- [0027] 본 발명은 기존 공정에 비해 메탄올의 높은 전환율을 실현하고자, 디메틸카보네이트에 대한 고 선택도를 가지는 메탄올의 산화성 카르보닐화 반응을 위한 장치 및 공정을 개선한 것으로서, 보다 구체적으로는 담지체에 Cu<sup>+</sup> 또는 Cu<sup>2+</sup>의 구리이온이 담지된 촉매가 반응기에 충전된 상태에서 메탄올의 산화성 카르보닐화에 의한 디메틸카보네이트 합성 반응을 위한 원료 공급 경로를 개선한 점, 그리고 Cu-담지촉매 존재하에서 상향식 또는 하향식 관형 반응기(Tubular reactor)를 사용하여 기체상 메탄올을 산화성 카르보닐화 반응시켜 디메틸카보네이트를 용이하게 제조할 수 있도록 한 점에 주된 특징이 있다.
- [0028] 여기서, 본 발명의 일 실시예에 따른 디메틸카보네이트 제조 장치에 대한 구성을 살펴보면 다음과 같다.
- [0029] 첨부한 도 1은 본 발명의 일 실시예에 따른 반응기로서, 기체상 메탄올의 산화성 카르보닐화 반응에 사용되는 하향식 기체상 연속반응기를 나타낸 개략도이다.
- [0030] 먼저, 구리 담지촉매 즉, 담지체에 Cu<sup>+</sup> 또는 Cu<sup>2+</sup>의 구리이온이 담지된 촉매(12)가 튜브형 반응기(10, 관형 반응기 = 로)내에 충전된다.
- [0031] 이때, 상기 반응기(10)내의 촉매(12) 유실을 막기 위해 촉매 전후 위치에 유리섬유 또는 철망(미도시됨)이 부착된다.
- [0032] 또한, 상기 반응기(10)의 벽면내에는 온도 조절수단으로서, 온도 조절이 가능한 히터(Heater)가 내설되어, 반응기의 온도가 디메틸카보네이트 합성이 가능한 온도(100~170℃)까지 승온될 수 있다.
- [0033] 또는, 상기 반응기(10)를 온도조절이 가능한 로(Furnace)내에 별도로 장착하여, 로의 가열에 의하여 반응기(10)

0)의 온도를 승온시킬 수 있다.

- [0034] 이러한 반응기(10)의 상단 입구에는 불활성기체(Ar) 저장탱크(16)와 산소(O<sub>2</sub>) 저장탱크(18), 일산화탄소(CO) 저장탱크(20)가 각각 별도의 공급라인에 의하여 연결된다.
- [0035] 보다 상세하게는, 상기 불활성기체 저장탱크(16)의 출구로부터 연장된 제1공급라인(21)과, 산소 저장탱크(18)의 출구로부터 연장된 제2공급라인(22)은 제3공급라인(23)에 의하여 하나로 합쳐져서 반응기(10)의 상단 입구에 함께 연결되고, 상기 일산화탄소 저장탱크(20)로부터 연장된 제4공급라인(24)은 독립적인 공급라인을 이루면서 반응기(10)의 상단 입구에 별도로 연결된다.
- [0036] 바람직하게는, 일산화탄소를 반응기로 별도로 공급하기 위한 제4공급라인(24)은 반응기(10)의 전체 길이 중 하향식 흐름에서는 상부 10~50% 위치, 상향식 흐름에서는 하부 10~50% 위치에서 담지 촉매(12)에 닿지 않는 높이에 위치하여야 한다.
- [0037] 상기 일산화탄소를 공급하는 제4공급라인(24)의 위치 한정 및 촉매(12)에 닿지 않아야 하는 이유는 제4공급라인(24)에서 나오는 일산화탄소가 촉매 표면층 전체에 확산이 잘되면서 높은 DMC 수율을 얻을 수 있도록 함에 있고, 반면 제4공급라인(24)이 촉매에 닿아 일산화탄소가 분사될 경우 유량에 따라 촉매표면이 파헤치거나 촉매층 안에서 분사되어 DMC 수율을 저하시킬 수 있기 때문이다.
- [0038] 이때, 상기 제3공급라인(23)에는 반응기에 메탄올(Methanol)을 주입하기 위한 메탄올 주입라인(25)이 연결되며, 이 메탄올 주입라인을 통하여 반응기로 공급되는 메탄올은 정량펌프(미도시됨)를 이용하여 일정한 양이 주입되도록 한다.
- [0039] 또한, 상기 불활성기체가 흐르는 제1공급라인(21)과 산소가 흐르는 제2공급라인(22), 그리고 일산화탄소가 흐르는 제4공급라인(24)에는 각각 기체 흐름 조절장치(26, Mass Flow Controller)가 장착되고, 또한 기체 흐름 조절장치(26)를 통과한 기체의 역류를 막기 위한 체크밸브(27)가 장착된다.
- [0040] 한편, 메탄올을 기체화하기 위해 반응기(10)의 벽면내에는 온도 조절이 가능한 가열수단으로서 히터(Heater)가 내설되고, 반응기(10)의 하단 출구에는 역압 조절장치(14, Back Pressure Regulator)가 설치되어 반응기의 내부 압력(0~50kg/cm<sup>2</sup>)이 조절된다.
- [0041] 여기서, 상기한 구성으로 이루어진 본 발명의 일 실시예에 따른 디메틸카보네이트 제조 장치에 대한 작동 흐름을 살펴보면 다음과 같다.
- [0042] 상기 반응기(10)에 Cu-담지 촉매(12)가 충전된 상태에서, 불활성기체 저장탱크(16)로부터의 불활성기체가 제1공급라인(21)으로 공급되는 동시에 산소 저장탱크(18)로부터의 산소가 제2공급라인(22)으로 공급된 후, 불활성기체와 산소는 제3공급라인(23)을 통하여 반응기(10)내에 함께 공급된다.
- [0043] 또한, 상기 일산화탄소 저장탱크(20)로부터의 일산화탄소가 제4공급라인(24)을 통하여 반응기(10)에 독립적으로 공급된다.
- [0044] 또한, 상기 불활성기체 및 산소와 함께 메탄올이 메탄올 주입라인(25) 및 제3공급라인(23)을 통하여 반응기(10)에 주입된다.
- [0045] 바람직하게는, 상기 메탄올 : 일산화탄소 : 불활성기체 : 산소는 4 : 4 이상 : 2 이상 : 1 의 비율로 조절하여 반응기 내부로 공급되도록 하며, 이때의 공급량 비율 조절은 상기한 정량펌프 및 기체 흐름 조절장치(26)에 의하여 조절될 수 있다.
- [0046] 이렇게 메탄올 : 일산화탄소 : 불활성기체 : 산소가 4 : 4 이상 : 2 이상 : 1 의 비율로 조절되어 반응기(10)로 공급되면, 히터에 의하여 온도 조절된 반응기(10)내의 100℃ 내지 170℃ 온도 조건 및 역압 조절장치에 의한 0 ~ 50 kg/cm<sup>2</sup>의 압력조건에서 상기한 반응식 (1)과 같은 반응을 하여 디메틸카보네이트로 용이하게 제조된다.
- [0047] 한편, 본 발명의 다른 실시예에 따른 디메틸카보네이트 제조 장치는 상기한 일 실시예의 하향식 기체상 반응기와 달리 기체의 흐름을 상향식으로 구성한 상향식 기체상 반응기를 제공하고자 한 것으로서, 첨부한 도 2에 도시된 바와 같이 기체의 흐름을 상향식으로 구성한 점에서 일 실시예와 다를 뿐, 그 구성 및 작동 흐름은 일 실시예의 하향식 기체상 반응기와 동일하므로, 구체적인 설명은 생략하기로 한다.
- [0048] 이상에서 설명한 바와 같은 본 발명을 하기의 실시예에 의거하여 더욱 상세히 설명하겠는 바, 본 발명이 이에 한정되는 것은 아니다.

[0049] **실시예**

[0050] 상기한 본 발명의 일 실시예에 따른 하향식 기체상 반응기(도 1 참조)를 이용하여 디메틸카보네이트를 아래와 같이 제조하였다.

[0051] 먼저, Cu-담지 촉매가 충전된 반응기(10)를 온도조절이 가능한 로(Furnace)내에 장착하고, 반응기(10)의 내부온도를 150℃까지 승온시킨 다음, 불활성기체 저장탱크(16)로부터의 불활성기체와 산소 저장탱크(18)로부터의 산소를 제3공급라인(23)을 통하여 반응기(10)내에 함께 공급하고, 이와 동시에 상기 일산화탄소 저장탱크(20)로부터의 일산화탄소를 제4공급라인(24)을 통하여 반응기(10)에 독립적으로 공급하였다.

[0052] 또한, 메탄올을 가스화시킨 메탄올 기체를 메탄올 주입라인(25) 및 제3공급라인(23)을 통하여 반응기(10)에 주입하였다.

[0053] 이때, 상기 메탄올/일산화탄소/산소/알곤의 공급 유속은 각각 아래의 표 1에 기재된 바와 같이, 0.017(cc/min)/37.6(cc/min)/1.13(cc/min)/17.6(cc/min)으로 일정하게 조절하여 공급하였으며, 반응기 내부의 압력은 상압을 유지시킨 후, 점차 5(kg/cm<sup>2</sup>), 10(kg/cm<sup>2</sup>)으로 증가시켜 디메틸카보네이트를 제조하였다.

[0054] 이렇게 본 발명의 실시예에 의하여 제조된 디메틸카보네이트(DMC) 수율을 기체 크로마토그래피로 측정하였으며, 그 결과는 하기의 표 1에 나타낸 바와 같다.

**표 1**

반응기체 유속(cc/min)				압력 (kg/cm <sup>2</sup> )	DMC 수율 (%)
MeOH	CO	O <sub>2</sub>	Ar		
0.017	37.6	1.13	17.6	상압	19.9
0.017	37.6	1.13	17.6	5	30.9
0.017	37.6	1.13	17.6	10	40.5

[0055]

[0056] **비교예**

[0057] 비교예로서, 원료 투입라인을 하나로 통일한 연속식 기체상 반응기를 이용하여 디메틸카보네이트를 제조하였다.

[0058] 즉, 본 발명의 원료 투입 개선 효과를 비교 평가하기 위하여, 메탄올/일산화탄소/산소/알곤을 하나의 관을 통하여 함께 섞어서 동시에 반응기내에 주입한 후, 실시예와 동일 조건에서 디메틸카보네이트를 제조하였으며, 이렇게 비교예에 의하여 제조된 디메틸카보네이트 수율을 기체 크로마토그래피로 측정하였으며, 그 결과는 하기의 표 2에 나타낸 바와 같다.

**표 2**

반응기체 유속(cc/min)				압력 (kg/cm <sup>2</sup> )	DMC 수율 (%)
MeOH	CO	O <sub>2</sub>	Ar		
0.017	37.6	1.13	17.6	상압	5.5
0.017	37.6	1.13	17.6	5	11.2
0.017	37.6	1.13	17.6	10	16.7

[0059]

[0060] 위의 표 1 및 표 2에서 보듯이, 본 발명에 따른 실시예의 경우 비교예에 비하여 디메틸카보네이트의 수율을 높이는 효과가 있음을 알 수 있었다.



[0061]

이러한 본 발명의 실시예에 따른 효과는 구리 촉매에 메탄올이 존재할 때 먼저 산소가 공급되어 분자적으로 흡착된 메탄올이 메톡시드(Methoxide) 종으로 전환되고, 이것이 별도로 공급되는 일산화탄소 첨가로 디메틸카보네이트로 전환됨에 기인한다.

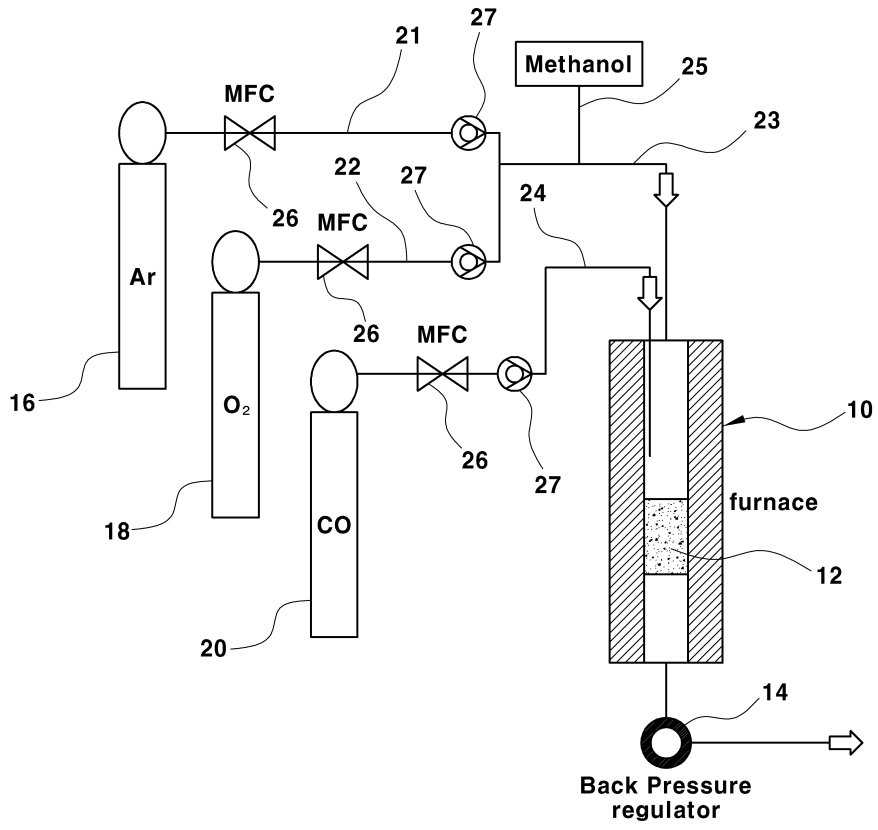
**부호의 설명**

[0062]

- 10 : 반응기
- 12 : 촉매
- 14 : 역압 조절장치
- 16 : 불활성기체 저장탱크
- 18 : 산소 저장탱크
- 20 : 일산화탄소 저장탱크
- 21 : 제1공급라인
- 22 : 제2공급라인
- 23 : 제3공급라인
- 24 : 제4공급라인
- 25 : 메탄올 주입라인
- 26 : 기체 흐름 조절장치
- 27 : 체크밸브

도면

도면1



도면2

