

 (19) 대한민국특허청(KR) (12) 공개특허공보(A)	(11) 공개번호 10-2012-0045805 (43) 공개일자 2012년05월09일
(51) 국제특허분류(Int. Cl.) B01J 19/28 (2006.01) B01D 9/02 (2006.01) C10G 31/10 (2006.01) (21) 출원번호 10-2010-0107614 (22) 출원일자 2010년11월01일 심사청구일자 2010년11월01일	(71) 출원인 경희대학교 산학협력단 경기도 용인시 기흥구 덕영대로 1732, 국제캠퍼스 내 (서천동, 경희대학교) 케이엔디티앤아이 주식회사 서울특별시 구로구 디지털로33길 28, 7층 708호 709호 (구로동, 우림이비지센타) (72) 발명자 김우식 서울특별시 광진구 구의강변로 11, 한양아파트 2-401 (자양동) 장 준 현 서울특별시 동대문구 왕산로22길 52, 501호 (용두동) (뒷면에 계속) (74) 대리인 이종우

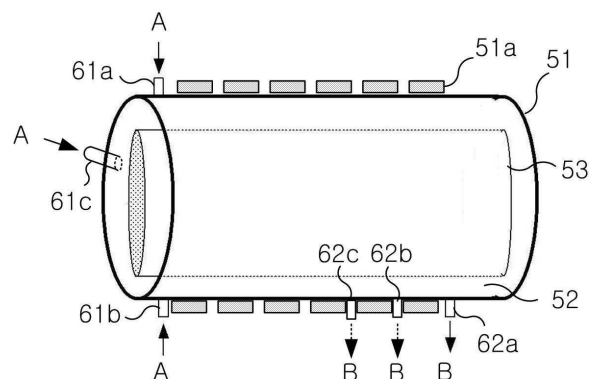
전체 청구항 수 : 총 10 항

(54) 발명의 명칭 와류발생장치를 이용하는 용융결정화 방법

(57) 요약

본 발명은 종축을 함께 공유하는 외부통과 내부통으로 이루어지되 상기 외부통과 내부통 사이는 유체통로를 이루도록 비어 있는 이중통 구조를 하고, 상기 외부통과 내부통 중 어느 하나는 상기 종축에 수직한 단면이 원 형상을 하고 나머지 다른 하나는 상기 종축에 수직한 단면이 타원 형상을 하며, 상기 종축을 회전축으로 하여 이루어지는 상기 외부통과 내부통의 상대적 회전운동을 통하여 상기 유체통로에서 유체가 와류형태로 흐르도록 하며, 상기 내부통 또는 외부통에는 상기 유체통로의 온도를 제어하기 위한 열교환수단이 설치된 용융결정화 장치를 이용하여 용융결정화 공정을 진행하는 것을 특징으로 한다. 본 발명에 의하면, 종래에 비하여 와류의 유동이 더욱 활발하고 균일하게 일어나기 때문에 작고 균일한 결정생성이 이루어질 뿐만 아니라 냉각도 균일하게 이루어지기 때문에 작은 고순도 결정을 빠른 시간 내에 높은 수율로 얻을 수 있다. 또한, 귀환포트를 사용할 경우 결정화가 더 쉽게 일어날 뿐만 아니라 장치의 길이를 짧게 할 수 있으며 코어셀 입자 형태의 결정체를 얻을 수 있다. 그리고 나선형 돌출 스크류를 설치하면 와류의 요동이 더 커질 뿐만 아니라 나선형 돌출 스크류의 날에 의해 조대한 파라핀 결정이 분쇄되기 때문에 이러한 문제를 방지할 수 있다.

대표도 - 도9



(72) 발명자

강 혜 련

서울특별시 중랑구 중랑천로 202, 선경아트빌라
302호 (중화동)

방 상 구

서울특별시 마포구 토정로 167, 서강해모로 APT
104동 1703호 (창전동)

특허청구의 범위

청구항 1

종축을 함께 공유하는 외부통과 내부통으로 이루어지되 상기 외부통과 내부통 사이는 유체통로를 이루도록 비어 있는 이중통 구조를 하고, 상기 외부통과 내부통 중 어느 하나는 상기 종축에 수직한 단면이 원 형상을 하고 나머지 다른 하나는 상기 종축에 수직한 단면이 타원 형상을 하며, 상기 종축을 회전축으로 하여 이루어지는 상기 외부통과 내부통의 상대적 회전운동을 통하여 상기 유체통로에서 유체가 와류형태로 흐르도록 하며, 상기 외부통의 전단부에는 상기 유체통로에 연통되는 유입포트가 마련되며 상기 외부통의 후단부에는 상기 유체통로에 연통되는 유출포트가 마련되고, 상기 내부통 또는 외부통에는 상기 유체통로의 온도를 제어하기 위한 열교환수단이 설치된 용융결정화 장치를 이용하여 용융결정화 공정을 진행하되,

상기 유입포트로 액상의 소스원료를 투입하여 상기 외부통과 내부통의 상대적 회전운동을 통하여 상기 소스원료에 와류를 야기시키면서 상기 열교환수단에 냉각수를 흘려 보내어 상기 와류 흐름에 결정이 생성되도록 하는 제1단계;

상기 결정을 포함하는 결과물을 상기 유출포트로 배출하는 제2단계; 및

상기 유출포트로 배출된 결과물 내에서 상기 결정을 걸러내는 제3단계; 를 포함하는 것을 특징으로 하는 용융결정화 방법.

청구항 2

종축을 함께 공유하는 외부통과 내부통으로 이루어지되 상기 외부통과 내부통 사이는 유체통로를 이루도록 비어 있는 이중통 구조를 하고, 상기 외부통과 내부통이 종축을 따라서 일정한 간격으로 서로 이격되도록 상기 외부통과 내부통의 측벽이 경사지며, 상기 종축을 회전축으로 하여 이루어지는 상기 외부통과 내부통의 상대적 회전운동을 통하여 상기 유체통로에서 유체가 와류형태로 흐르도록 하며, 상기 외부통의 전단부에는 상기 유체통로에 연통되는 유입포트가 마련되며 상기 외부통의 후단부에는 상기 유체통로에 연통되는 유출포트가 마련되고, 상기 내부통 또는 외부통에는 상기 유체통로의 온도를 제어하기 위한 열교환수단이 설치된 용융결정화 장치를 이용하여 용융결정화 공정을 진행하되,

상기 유입포트로 액상의 소스원료를 투입하여 상기 외부통과 내부통의 상대적 회전운동을 통하여 상기 소스원료에 와류를 야기시키면서 상기 열교환수단에 냉각수를 흘려 보내어 상기 와류 흐름에 결정이 생기도록 하는 제1단계;

상기 결정을 포함하는 결과물을 상기 유출포트로 배출하는 제2단계; 및

상기 유출포트로 배출된 결과물 내에서 상기 결정을 걸러내는 제3단계; 를 포함하는 것을 특징으로 하는 용융결정화 방법.

청구항 3

제1항에 있어서, 상기 타원형상은 단축지름과 장축지름의 비가 $1 < \text{장축지름}/\text{단축지름} < 20$ 인 것을 특징으로 하는 용융결정화 방법.

청구항 4

제1항 또는 제2항에 있어서, 상기 소스원료가 듀렌, 파라핀, 자일렌(xylene), 벤젠(benzene), 톨루엔(toluene), 또는 TPA(terephthalic acid, benzene-1,4-dicarboxylic acid)을 포함하는 것을 특징으로 하는 용융결정화 방법.

청구항 5

제1항 또는 제2항에 있어서, 상기 소스원료가 듀렌 함유 소스원료이고, 상기 외부통과 내부통의 상대적 회전속도가 1~5000rpm이며, 상기 외부통과 내부통 사이의 간격이 외부원통 직경의 0.1~50% 이며, 상기 제1단계에서 상기 유체통로에 흐르는 소스원료가 상기 열교환수단에 의해서 0℃까지 0.1℃ ~ 20℃/min의 속도로 냉각되는 것을

특징으로 하는 용융결정화 방법.

청구항 6

제5항에 있어서, 상기 듀렌 함유 소스원료가 0~100℃의 액상원료인 것을 특징으로 하는 용융결정화 방법.

청구항 7

제1항 또는 제2항에 있어서, 상기 외부통과 내부통의 상대적 회전운동은 상기 외부통은 고정되고 상기 내부통이 회전함으로써 이루어지고, 상기 외부통에는 냉각매체가 흐르는 열교환수단이 설치되는 것을 특징으로 하는 용융결정화 방법.

청구항 8

제1항 또는 제2항에 있어서, 상기 유입포트 또는 유출포트는 종축방향으로 직렬적으로 배열되도록 복수개 설치되는 것을 특징으로 하는 용융결정화 방법.

청구항 9

제1항 또는 제2항에 있어서, 상기 유입포트 및 유출포트는 복수개 마련되며, 상기 유출포트에서 나오는 결과물이 상기 유입포트로 귀환되어 다시 상기 유체통로로 제공되도록 상기 유출포트 중의 어느 하나와 상기 유입포트 중의 어느 하나는 서로 연결되어 귀환포트로의 기능을 하는 것을 특징으로 하는 용융결정화 방법.

청구항 10

제1항 또는 제2항에 있어서, 상기 내부통의 외면 및 외부통의 내면 중의 어느 한 곳에 스크류 형상으로 돌출되는 나선형 돌출 스크류가 설치되는 것을 특징으로 하는 용융결정화 방법.

명세서

기술분야

[0001] 본 발명은 용융결정화 방법에 관한 것으로서, 특히 종래의 이중 원통구조의 쿠에트-테일러 와류 반응기를 용융결정화 공정에 유리하도록 개량하고, 이 장치를 이용하여 듀렌, 파라핀, 자일렌(xylene), 벤젠(benzene), 톨루엔(toluene), TPA(terephthalic acid, benzene-1,4-dicarboxylic acid) 등 석유화학 및 정밀화학 물질을 높은 회수율로 고순도 분리 정제하는 연속식 및 회분식 용융결정화 방법에 관한 것이다.

[0002]

배경기술

[0003] 석유화학산업에서 나프타 분해공정 중 상당량의 방향족 잔사유와 비방향족 잔사유가 부생되고 있으며, 대부분의 잔사유는 다량 함유된 유용성분을 분리하지 않은 채 가솔린 블렌딩(blending) 및 용제, 카본 블랙 원료로 사용되고 있다. 따라서 나프타 분해 공정의 원가절감 및 자원 활용 차원에서 잔사유 중의 유용성분 분리에 관한 연구는 절대적으로 필요하다 볼 수 있다. 잔사유는 100여가지의 유사비점 성분과 이성질체로 구성되어 있으며, 잔사유 속에 포함된 성분은 파라핀(paraffin), 올레핀(olefin), 아로마틱(aromatic) 등으로 나눌 수 있다. 이중 파라핀은 주로 C₁₀ 성분이고, 아로마틱은 C₈, C₉, C₁₀, C₁₁⁺ 성분을 포함한다. C₁₀ 성분에는 듀렌(durene), 이소듀렌(isodurene) 등이 있으며 가장 많이 함유된 성분은 디메틸에틸벤젠이다. C₁₀ 성분은 전체 잔사유분의 17.9wt%를 차지한다. C₁₀ 방향족 화합물은 거의 모두가 벤젠고리에 메틸, 에틸기들이 붙어 있는 모양을 하고 있으므로 탈알킬화에 의해 치환된 알킬기들을 제거시키면서 유용한 벤젠, 톨루엔, 자일렌으로 될 수 있다.

[0004] 잔사유분 중에서 듀렌(Durene, 1,2,4,5-tetramethylbenzene)은 도 1에서와 같이 분자량이 134.22, 녹는점이 79.2℃, 끓는점이 196℃ 이며, 물에 녹지 않으며 알콜계, 벤젠, 톨루엔에 용해가 잘되는 물성을 가지고, 반도체

피막, 섬유, 가소제, 유기 합성 등의 합성 중합체용 중간체, 계면활성제, 경화제, 가소제, 염료 등과 같이 다양한 용도로 사용된다. 듀렌원으로서의 석유의 촉매처리공정 및 o-크실렌의 알킬화 공정으로부터 생성되는 코올타르 증류물 또는 분류물이 있다. 통상 듀렌의 정제공정은 좁은 비점 또는 융점 범위를 가지는 분류물을 재결정시킴으로써 달성되지만 다수의 이론적인 단계가 요구된다. 차토프(chartov) 등에 따르면 이성질체 간의 임계 직경차가 너무 작기 때문에 제올라이트 흡착에 의해서는 듀렌을 그의 이성질체로부터 분리할 수 없었다[chem. Abstract 92(7):52828d(1972)].

[0005] 파라핀은 파라핀계 탄화수소 또는 고급포화탄화수소로 이루어진 파라핀납이나 유동파라핀의 총칭으로, 주된 특징은 반응성이 약하고 화학약품에 대하여 내성이 있는 점이다. 파라핀납은 무색 반투명한 고체로 정제의 정도 및 성분 등에 의하여 여러 가지 녹는점을 나타내는데 47~65℃ 범위이다. 파라핀납은 중유유분에 함유되어 있으며 냉각되어 석출된 것에 압력을 가하여 여과해서 얻으며, 양초, 전기절연재료, 크레용 등의 원료로 사용된다. 유동 파라핀은 석유에서 얻는 윤활유의 유분을 잘 정제한 것이며, 무색으로 휘발성이 적으며 거의 냄새가 없는 액체로서, 연고, 좌약 등의 기재로 이용된다.

[0006] 잔사유분 중에서 듀렌(durene)은 증류(distillation)를 통해서 획득하나, 이 경우 75%의 회수율(yield), 97%의 순도(purify)에 그치고 있다. 그리고 경유 내에 존재하는 파라핀 성분들은 온도가 낮아지게 되면 결정을 형성하여 고체로 석출되기 때문에, 석출된 왁스 결정 성분들이 양이 일정 이상이 되면 차량의 연료필터를 막아 연료공급을 방해하는 문제가 생긴다.

[0007] 따라서 본 발명은 종래의 이중 원통구조의 쿠에트-테일러 와류 반응기를 개량하여, 여러가지 분리 정제 방법 중에서 특히 용융결정화 공정에 유리하도록 함으로써, 상술한 듀렌, 파라핀 뿐만 아니라 자일렌(xylene), 벤젠(benzene), 톨루엔(toluene), TPA(terephthalic acid, benzene-1,4-dicarboxylic acid) 등의 석유화학 및 정밀 화학 물질을 용융결정화 공정으로 분리 추출해 내어서 회수율과 순도를 높이고자 하는 데에 목적이 있다.

[0008] 도 2 내지 도 5는 종래의 쿠에트-테일러 와류 반응장치 설명하기 위한 도면들로서, 도 2는 개략도이고, 도 3은 도 2의 측면단면도이고, 도 4는 도 2의 A-A'선에 따른 단면도이고, 도 5는 시간에 따른 유체통로(152)의 폭(d) 변화 및 종축에 따른 선속도(v)의 변화를 설명하기 위한 도면이다.

[0009] 도 2 내지 도 4를 참조하면, 종래의 쿠에트-테일러 와류 반응장치는 외부고정원통(151)과 그 내부에서 회전하는 내부회전원통(153)을 포함하여 이루어진다. 내부회전원통(153)은 외부고정원통(151)의 종축과 일치하는 회전축(154)을 갖는다. 내부회전원통(153)과 외부고정원통(151)은 소정의 간격(d)으로 서로 이격되도록 설치되어 내부회전원통(153)과 외부고정원통(151) 사이에는 반응액체가 흐르는 유체통로(152)가 형성된다.

[0010] 내부회전원통(153)이 회전하면 유체통로(152)에서 내부회전원통(153) 쪽에 위치하고 있던 유체가 원심력에 의해 외부고정원통(151) 방향으로 나가려는 경향을 가지게 되고 이로 인하여 유체는 불안정하게 되어 회전축(154)을 따라 규칙적이며 서로 반대방향으로 회전하는 고리쌍 배열의 와류(155)가 형성된다. 이를 테일러 혹은 쿠에트-테일러 와류라고 한다.

[0011] 상술한 종래의 쿠에트-테일러 와류 반응장치는 도 4에서 알 수 있듯이, 회전축(154)에 대한 내부회전원통(153)의 수직 단면이 외부고정원통(151)과 같은 원 형상을 하여 외부고정원통(151)과 내부회전원통(153)이 동심원적으로 배열되기 때문에 도 5a에 도시된 바와 같이 내부회전원통(153)이 회전하는 동안에 외부고정원통(151)의 특정한 위치, 예컨대 점 A에서의 내부회전원통(153)과 외부고정원통(151) 사이의 간격(d)이 시간에 따라 변하지 않고 일정하게 된다. 또한, 내부회전원통(153)의 직경이 회전축(154)을 따라 변함이 없기 때문에 도 4b에 도시된 바와 같이 내부회전원통(153)의 선속도(v)가 회전축(154)을 따라 변하지 않는다. 따라서 유체통로(152)에서의 상황이 시간에 따라 또는 회전축(154)을 따라 변하지 않고 일정하게 되어 단지 내부회전원통(153)과 외부고정원통(151) 사이의 상대적인 회전에 의해서만 와류가 발생하므로 와류의 유동성에 한계를 갖는다.

[0012] 그러므로 종래의 쿠에트-테일러를 용융결정화 장치로 사용하는 경우, 결정생성을 활발히 하는데 부족함이 있고, 생성물의 결정입자가 조대하며, 그 조대화가 심한 경우에는 이로 인하여 유체통로나 유출포트가 막히는 문제가 발생할 수 있으며, 유체통로에 흐르는 유체에 열분배가 제대로 이루어지지 않아 결정형성이 균일하지 못하고 또한 신속하지도 못하여 대량생산에 적합하지 못하다는 문제가 있다.

[0013]

발명의 내용

해결하려는 과제

- [0014] 본 발명이 해결하려는 과제는, 종래의 쿠에트-테일러 와류 반응기를 종축방향으로의 유체통로 간격을 일정하게 하여 유체통로의 온도가 종축방향에 따라 일정하게 유지되도록 하는 동시에, 와류의 유동이 더 활발하도록 구조를 개량하여 상술한 종래의 문제점을 해결할 수 있는 이용한 용융결정화 방법을 제공하는 데 있다.

과제의 해결 수단

- [0015] 상기 과제를 달성하기 위한 본 발명의 일예에 따른 용융결정화 방법은,
- [0016] 종축을 함께 공유하는 외부통과 내부통으로 이루어지되 상기 외부통과 내부통 사이는 유체통로를 이루도록 비어 있는 이중통 구조를 하고, 상기 외부통과 내부통 중 어느 하나는 상기 종축에 수직인 단면이 원 형상을 하고 나머지 다른 하나는 상기 종축에 수직인 단면이 타원 형상을 하며, 상기 종축을 회전축으로 하여 이루어지는 상기 외부통과 내부통의 상대적 회전운동을 통하여 상기 유체통로에서 유체가 와류형태로 흐르도록 하며, 상기 외부통의 전단부에는 상기 유체통로에 연통되는 유입포트가 마련되며 상기 외부통의 후단부에는 상기 유체통로에 연통되는 유출포트가 마련되고, 상기 내부통 또는 외부통에는 상기 유체통로의 온도를 제어하기 위한 열교환수단이 설치된 용융결정화 장치를 이용하여 용융결정화 공정을 진행하되,
- [0017] 상기 유입포트로 액상의 소스원료를 투입하여 상기 외부통과 내부통의 상대적 회전운동을 통하여 상기 소스원료에 와류를 야기시키면서 상기 열교환수단에 냉각수를 흘려 보내어 상기 와류 흐름에 결정이 생성되도록 하는 제1단계;
- [0018] 상기 결정을 포함하는 결과물을 상기 유출포트로 배출하는 제2단계; 및
- [0019] 상기 유출포트로 배출된 결과물 내에서 상기 결정을 걸러내는 제3단계; 를 포함하는 것을 특징으로 한다.
- [0020] 상기 과제를 달성하기 위한 본 발명의 다른 예에 따른 용융결정화 방법은,
- [0021] 종축을 함께 공유하는 외부통과 내부통으로 이루어지되 상기 외부통과 내부통 사이는 유체통로를 이루도록 비어 있는 이중통 구조를 하고, 상기 외부통과 내부통이 종축을 따라서 일정한 간격으로 서로 이격되도록 상기 외부통과 내부통의 측벽이 경사지며, 상기 종축을 회전축으로 하여 이루어지는 상기 외부통과 내부통의 상대적 회전운동을 통하여 상기 유체통로에서 유체가 와류형태로 흐르도록 하며, 상기 외부통의 전단부에는 상기 유체통로에 연통되는 유입포트가 마련되며 상기 외부통의 후단부에는 상기 유체통로에 연통되는 유출포트가 마련되고, 상기 내부통 또는 외부통에는 상기 유체통로의 온도를 제어하기 위한 열교환수단이 설치된 용융결정화 장치를 이용하여 용융결정화 공정을 진행하되,
- [0022] 상기 유입포트로 액상의 소스원료를 투입하여 상기 외부통과 내부통의 상대적 회전운동을 통하여 상기 소스원료에 와류를 야기시키면서 상기 열교환수단에 냉각수를 흘려 보내어 상기 와류 흐름에 결정이 생기도록 하는 제1단계;
- [0023] 상기 결정을 포함하는 결과물을 상기 유출포트로 배출하는 제2단계; 및
- [0024] 상기 유출포트로 배출된 결과물 내에서 상기 결정을 걸러내는 제3단계; 를 포함하는 것을 특징으로 한다.
- [0025] 상기 타원형상은 단축지름과 장축지름의 비가 $1 < \text{장축지름}/\text{단축지름} < 20$ 인 것이 바람직하다.
- [0026] 상기 소스원료로는 듀렌, 파라핀, 자일렌(xylene), 벤젠(benzene), 톨루엔(toluene), 또는 TPA(terephthalic acid, benzene-1,4-dicarboxylic acid) 등의 석유화학 및 정밀화학 물질을 포함하는 것이 사용될 수 있다.
- [0027] 상기 소스원료가 듀렌 함유 소스원료일 경우, 상기 외부통과 내부통의 상대적 회전속도는 1~5000rpm이며, 상기 외부통과 내부통 사이의 간격은 외부원통 직경의 0.1~50% 이며, 상기 제1단계에서 상기 유체통로에 흐르는 소스원료는 상기 열교환수단에 의해서 0℃까지 0.1℃ ~ 20℃/min의 속도로 냉각되는 것이 바람직하다. 이 때, 상기 듀렌 함유 소스원료로는 0~100℃의 액상원료를 사용하는 것이 바람직하다.
- [0028] 상기 외부통과 내부통의 상대적 회전운동은 상기 외부통은 고정되고 상기 내부통이 회전함으로써 이루어지는 것이 바람직하고, 이 때 상기 외부통에는 냉각매체가 흐르는 열교환수단이 설치되는 것이 바람직하다.
- [0029] 상기 유입포트 또는 유출포트는 종축방향으로 직렬적으로 배열되도록 복수개 설치될 수 있으며, 상기 유출포트

에서 나오는 결과물이 상기 유입포트로 귀환되어 다시 상기 유체통로로 제공되도록 상기 유출포트 중의 어느 하나와 상기 유입포트 중의 어느 하나는 서로 연결되어 귀환포트로의 기능을 할 수 있다.

[0030] 상기 내부통의 외면 및 외부통의 내면 중의 어느 한 곳에 스크류 형상으로 돌출되는 나선형 돌출 스크류가 설치되는 것이 바람직하다.

발명의 효과

[0031] 본 발명에 의하면, 종래에 비하여 와류의 유동이 더욱 활발하고 균일하게 일어나기 때문에 작고 균일한 결정생성이 이루어질 뿐만 아니라 냉각도 균일하게 이루어지기 때문에 작은 고순도 결정을 빠른 시간 내에 높은 수율로 얻을 수 있다. 또한, 귀환포트를 사용할 경우 결정화가 더 쉽게 일어날 뿐만 아니라 장치의 길이를 짧게 할 수 있으며 코어셀 입자 형태의 결정체를 얻을 수 있다. 그리고 나선형 돌출 스크류를 설치하면 와류의 요동이 더 커질 뿐만 아니라 나선형 돌출 스크류의 날에 의해 조대한 파라핀 결정이 분쇄되기 때문에 이러한 문제를 방지할 수 있다.

[0032]

도면의 간단한 설명

[0033] 도 1은 종래의 경우와 본 발명의 경우에 대한 듀렌 회수율 및 순도를 설명하기 위한 비교표;
 도 2는 종래의 쿠에트-테일러 와류 반응장치 설명하기 위한 개략도;
 도 3은 도 2의 측면면도;
 도 4는 도 2의 A-A'선에 따른 단면도;
 도 5는 시간에 따른 유체통로(152)의 폭(d) 변화 및 종축에 따른 선속도(v)의 변화를 설명하기 위한 도면;
 도 6은 본 발명의 제1실시예에 사용되는 개량된 쿠에트-테일러 와류 반응장치의 개략도;
 도 7은 도 6의 A-A'선에 따른 단면도;
 도 8은 시간에 따른 유체통로(52)의 폭(d) 변화를 설명하기 위한 그래프;
 도 9 내지 13은 본 발명에 따른 용융결정화 방법을 설명하기 위한 도면들;
 도 14는 돌출 스크류(64)를 설명하기 위한 도면;
 도 15는 본 발명의 제2실시예에 사용되는 개량된 쿠에트-테일러 와류 반응장치의 개략도;
 도 16은 도 15의 종축방향에 따른 선속도(v)의 변화를 설명하기 위한 그래프이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0034] 이하에서, 본 발명의 바람직한 실시예를 첨부한 도면들을 참조하여 상세히 설명한다. 아래의 실시예는 본 발명의 내용을 이해하기 위해 제시된 것일 뿐이며 당 분야에서 통상의 지식을 가진 자라면 본 발명의 기술적 사상 내에서 많은 변형이 가능할 것이다. 따라서 본 발명의 권리범위가 이러한 실시예에 한정되는 것으로 해석해서는 안 된다.

[0035] [실시예 1]

[0036] 도 6 내지 도 13은 본 발명의 제1실시예에 따른 용융결정화 장치 및 방법을 설명하기 위한 도면들로서, 종래와 달리 내부통이 원통이 아닌 타원통을 사용하는 경우이다. 여기서, 도 6은 본 발명의 제1실시예에 사용되는 개량된 쿠에트-테일러 와류 반응장치의 개략도이고, 도 7은 도 6의 A-A'선에 따른 단면도이고, 도 8은 시간에 따른 유체통로(52)의 폭(d) 변화를 설명하기 위한 그래프이고, 도 9 내지 13은 용융결정화 방법을 설명하기 위한 도면이고, 도 14는 돌출 스크류(64)를 설명하기 위한 도면이다.

[0037] 도 6 및 도 7을 참조하면, 본 발명의 제1실시예에 사용되는 와류 반응장치는 외부고정원통(51)과 그 내부에서 회전하는 내부회전타원통(53)을 포함하여 이루어진다. 내부회전타원통(53)은 외부고정원통(51)의 종축과 일치하

는 회전축(54)을 갖는다. 내부회전타원통(53)은 외부고정원통(51)의 내면과 소정간격 이격되도록 외부고정원통(51)에 나란하게 외부고정원통(51)에 내삽된다.

[0038] 내부회전타원통(53)은 회전축(54)을 따라 직경 변화가 없이 일정한 직경을 가지며 회전축(54)에 수직인 단면이 종래와 같은 원 형상을 하는 것이 아니라 타원 형상을 한다. 따라서 내부회전타원통(53)과 외부고정원통(51)은 외부고정원통(51)의 종축을 따라서 일정한 이격거리(d)를 유지한다.

[0039] 내부회전타원통(53)이 판 형상을 하면 쿠에트-테일러 와류를 발생시키는데 오히려 바람직하지 못할 수 있으므로 내부회전타원통(53)은 회전축(54)에 대한 수직 단면이 단축 지름(a)과 장축 지름(b)의 비가 $1 < b/a < 20$ 의 범위를 갖는 타원형인 것이 바람직하다.

[0040] 내부회전타원통(53)은 회전축(54)에 대한 수직단면이 타원 형상을 하므로 내부회전타원통(53)이 회전하는 동안에 외부고정원통(51)의 특정한 위치(A)에서의 내부회전타원통(53)과 외부고정원통(51) 사이의 간격(d)이 도 7에 도시된 바와 같이 시간에 따라 주기적인 사인파 형상으로 변하게 된다. 따라서 종래의 경우에 비해 유체의 요동에 규칙적인 새로운 변수가 추가되어 유체통로(52)에서의 와류의 유동이 더욱 활발하고 균일하게 이루어진다.

[0041] 도 6에서는 내부에 회전타원통(53)이 설치되고 외부에 고정원통(51)이 설치되는 경우를 예로 들었지만, 반대로 내부에 회전원통이 설치되고, 외부에 고정타원통이 설치될 수도 있으며, 또는 내부에 고정타원통이 설치되고 외부에 회전원통이 설치될 수도 있다.

[0042] 도 9는 용융결정화 방법으로 듀렌을 분리 정제하는 과정을 설명하기 위한 도면이다. 도 9를 참조하면, 외부고정원통(51)의 전단부에는 유체통로(52)와 연통되는 유입포트(61a, 61b, 61c)가 복수개 마련되며, 후단부에는 유체통로(52)와 연통되는 유출포트(62a, 62b, 62c)가 복수개 마련된다. 외부고정원통(51)에는 유체통로(52)의 온도를 제어하기 위한 열교환수단(51a)이 설치된다. 열교환수단(51a)에는 열교환매체가 흐르는데, 본 발명의 경우는 원료물질을 냉각시키야 하므로 냉각수가 흐를 것이다.

[0043] 각 유입포트(61a, 61b, 61c)를 통해 소스원료로서 듀렌 함유 소스원료(A)를 투입하면서 내부회전타원통(53)을 회전시키면 듀렌 함유 소스원료(A)가 유체통로(52)를 따라 와류를 형성하면서 흐르다가 열교환매체에 의해 듀렌 함유 소스원료(A)가 냉각되어 듀렌 함유 소스원료(A) 내의 듀렌 성분만 결정화되고 유출포트(62a, 62b, 62c)를 통해서 결정화된 듀렌과 나머지 액상의 성분들이 함께 포함된 결과물(B)이 배출된다. 유출포트(62a, 62b, 62c)를 통해 배출되는 결과물(B)에서 결정성분들을 걸러내면 듀렌이 분리 추출되는 것이다.

[0044] 도 10은 듀렌 함유 소스원료(A)로서 듀렌이 31.1 wt% 함유된 40℃의 액상원료를 사용하고, 내부회전타원통(53)을 0rpm, 100rpm, 500rpm 회전시키면서 열교환수단(51a)에 냉각수를 흘려보내며, 약 5cm의 유체통로(52)에 흐르는 듀렌 함유 소스원료(A)를 1℃/min의 속도로 0℃까지 냉각되도록 한 경우의 시간에 따른 듀렌 결정 회수율(Recovery %)을 나타낸 그래프이다. 도 10을 참조하면, 내부회전타원통(53)의 회전속도가 100rpm인 경우에 비하여 500rpm인 경우에 회수율이 80%로서 더 좋음을 알 수 있다. 이는 회전속도가 빠를수록 와류형성이 잘 이루어져 결정이 잘생기기 때문이다. 회전속도가 빠를수록 작고 균일한 결정이 생성된다.

[0045] 도 11은 도 10의 듀렌 함유 소스원료와 500rpm 회전이 회수된 결정성분의 순도를 측정하기 위한 GC-mass 측정 결과 그래프이다. 도 11을 참조하면, 참조부호 P로 표시한 피크가 듀렌을 나타내는 피크인데, 듀렌 함유 소스원료(A)의 GC-mass 피크(도 11a)에서는 듀렌 피크(P) 이외에 여러 가지 잔피크가 보이는 바, 듀렌 이외에 여러 성분이 혼재되어 있는 것을 알 수 있다. 그러나 500rpm 조건하에서 유출포트(62a, 62b, 62c)를 통해서 회수되는 결과물(B) 중 결정성분의 GC-mass 피크(도 11b)를 보면, 잔피크없이 듀렌 피크(P)만 보인다. 따라서 거의 100% (실제로는 약 99%)의 순도를 가지는 듀렌이 얻어졌다고 볼 수 있다.

[0046] 도 1b는 종래의 증류법과 본 발명에 따른 용융결정화법으로 듀렌을 분리 정제하는 경우의 회수율과 순도를 비교한 표이다. 종래에는 75%의 회수율과 97%의 순도를 얻는데 불과하였지만, 본 발명에 의할 경우에는 80%의 회수율과 99%의 순도를 얻을 수 있다. 또한 증류법(distillation)에 의할 경우에는 196℃까지의 온도상승이 요구되지만, 본 발명에 의할 경우에는 그 보다 저온, 예컨대 0~40℃의 온도범위에서 공정이 진행되므로 에너지를 절약할 수 있다.

[0047] 유입포트 및 유출포트 중 적어도 어느 하나는 외부고정원통(51)의 종축방향으로 복수개가 직렬적으로 배열됨으로써 어느 유입포트 및 유출포트를 사용하느냐에 따라서 유입포트와 유출포트 사이의 간격을 선택할 수 있도록 하는 것이 바람직하다. 도 9에서는 3개의 유입포트(61a, 61b, 61c)는 모두 동일한 출발선상에 있으며, 복수개의 유출포트(62a, 62b, 62c)가 종축방향으로 직렬적으로 배열되는 경우가 도시되었다. 유체통로(52)에서 유속 및 반응조건 등을 감안하여 복수개의 유출포트(62a, 62b, 62c) 중 하나를 선택함으로써 원하는 평균체류시간을 얻

을 수 있다.

- [0048] 유체통로(52)에서 반응이 일어날 때 내부회전타원통(53)과 외부고정원통(51) 사이의 간격(d)이 주기적인 사인과 형상으로 변하기 때문에 종래에 비하여 와류의 유동이 더욱 활발하고 균일하게 일어난다. 따라서 더욱 활발하고 작고 균일한 결정생성이 이루어질 뿐만 아니라 냉각도 균일하게 이루어지기 때문에 작은 고순도 결정의 듀렌을 빠른 시간 내에 높은 수율로 얻을 수 있다.
- [0049] 한편, 유입포트(61a, 61b, 61c) 중의 어느 하나를 귀환용으로 사용하여, 도 12에서와 같이 유출포트(62a, 62b, 62c) 중 어느 하나에서 나오는 결과물(B)을 다시 귀환용 유입포트(61a)로 귀환시킬 수도 있다. 그러면 짧은 길이의 장치에서도 대량으로 듀렌 결정을 분리 회수할 수 있게 된다. 이 경우에는 귀환된 결과물(B) 내의 결정성분이 다시 핵생성 사이트(site)로서의 역할을 하기 때문에 결정화가 더 쉽게 일어나고, 다른 조성을 가지는 복수개의 껍질이 뒤덮힌 코어셀 입자 형태의 결정체를 얻을 수 있다.
- [0050] 한편, 도 13에서와 같이 복수개의 유입포트(61a, 61b, 61c)를 종축방향으로 직렬적으로 배열하고 듀렌 함유 소스원료(A)의 투입위치를 차별화할 수도 있다.
- [0051] 도 14는 돌출 스크류(64)를 설명하기 위한 도면이다. 구체적으로 외부고정원통(51)의 내면 및 내부회전타원통(53)의 외면 중 어느 한 곳에 스크류 형상으로 돌출되는 나선형 돌출 스크류(64)가 설치된다. 나선형 돌출 스크류(64)를 설치하면 와류의 흐름을 크게 방해하지 않으면서 스크류형 와류(65)의 흐름이 별도로 더 생기기 때문에 와류의 요동이 더욱 균일하면서도 커지게 되어 더욱 작고 균일한 입자크기를 가지는 결정입자를 얻을 수 있다.
- [0052] 파라핀 함유 소스원료에서 파라핀을 용융결정화 방법으로 분리 정제하는 경우에는 유체통로(52) 내에서 파라핀 결정들이 생성되게 되는데, 이 때 파라핀이 조대하게 성장하도록 그래도 놔두면 파라핀 결정이 유체통로(52)의 벽에 달라붙은 채로 과도하게 조대해져 유체통로(52)가 막히게 되는 문제가 생긴다.
- [0053] 그런데, 이와 같이 나선형 돌출 스크류(64)를 설치하면 와류의 요동이 더 커질 뿐만 아니라 나선형 돌출 스크류(64)의 날에 의해 조대한 파라핀 결정이 분쇄되기 때문에 이러한 문제를 방지할 수 있다. 나아가 균일한 열분배가 일어나므로 유체통로(52) 전반에 걸쳐 결정이 균일하게 생성된다.
- [0054] [실시예 2]
- [0055] 도 15 및 도 16은 제2실시예에 따른 용융결정화 장치 및 방법을 설명하기 위한 도면들로서, 도 15는 본 발명의 제2실시예에 사용되는 개량된 쿠에트-테일러 와류 반응장치의 개략도이고, 도 16은 종축방향에 따른 선속도(v)의 변화를 설명하기 위한 그래프이다.
- [0056] 도 15 및 도 16을 참조하면, 본 발명의 제2실시예에 사용되는 와류 반응장치는 외부 경사고정원통(51)과 그 내부에서 회전하는 내부 경사회전원통(53)을 포함하여 이루어지며, 내부 경사회전원통(53)은 외부 경사고정원통(51)의 종축과 일치하는 회전축(54)을 갖는다.
- [0057] 내부 경사회전원통(53)과 외부 고정회전원통(51)의 측벽은 동일한 기울기로 경사지기 때문에 내부 경사회전원통(53)과 외부 회전고정원통(51) 사이의 간격(d)은 회전축(54)을 따라 일정하다. 내부 경사회전원통(53)의 대직경부(L)와 소직경부(S)는 동일한 각속도(ω)로 회전하기 때문에 도 16에 도시된 바와 같이 대직경부(L)가 소직경부(S)보다 더 큰 선속도(v)를 가지게 된다.
- [0058] 선속도(v)가 크면 쿠에트-테일러 와류가 더 활발히 발생하므로 소직경부(S)보다 대직경부(L)의 유체통로(52)에서 균일한 혼합, 균일한 반응, 균일한 결정생성, 큰 전단응력에 의한 파티클 깨짐(particle breakage)이 더 활발히 발생한다.
- [0059] 반면에 소직경부(S)에서는 선속도(v)가 상대적으로 느리므로 응집화(aggregation) 및 결정성장(growth)이 잘 이루어지고 파티클 깨짐(particle breakage)이 덜 이루어지기 때문에 소직경부(S)에서는 큰 입자를 만드는데 유리하고, 대직경부(L)에서는 작은 입자를 만드는데 유리하다.
- [0060] 제2실시예의 경우 내부 경사회전원통(53)이 회전할 때에 내부 경사회전원통(53)의 선속도가 유체의 흐름방향을 따라 일정하게 변하기 때문에 유체의 흐름방향에 따른 선속도의 변화 즉, 경사원통(52, 53)의 경사도를 고려하여 공정 레시피(recipe)를 다양화시킬 수 있다.

- [0061] 제1실시예에서의 유입포트(61a, 61b, 61c), 유출포트(62a, 62b, 62c), 온도조절수단(51a), 돌출 스크류(64)는 제2실시예의 경우에도 마찬가지로 적용된다. 내부 경사회전원통(53)과 외부 경사고정원통(51) 사이의 간격이 종축을 따라서 일정하므로 열교환수단(51a)은 유체통로(52)를 따라 균일하게 기여한다.
- [0062] 유입포트(61a, 61b, 61c)에서 유출포트(62a, 62b, 62c)로 갈수록 내부 경사회전원통(53)의 선속도가 균일하게 감소하기 때문에 유입포트(61a, 61b, 61c) 쪽에서 핵생성이 많이 일어나고 유출포트(62a, 62b, 62c)쪽으로 갈수록 핵성장이 활발히 일어나게 된다. 따라서 작고 균일한 입자를 얻기 위해서는 직경이 큰쪽에 유입포트를 설치하는 것이 바람직할 것이지만, 공정 레시피(recipe)에 따라서 유입포트(61a, 61b, 61c)와 유출포트(62a, 62b, 62c)의 위치를 바꾸어서 이러한 상황이 반대가 되도록 할 수도 있어 다양한 상황에 대처할 수 있게 된다.
- [0063] 그 외에 제2실시예의 용융결정화 장치를 이용한 용융결정화 방법은 앞선 제1실시예의 경우와 동일하므로 그 설명은 생략한다.

부호의 설명

- [0064] 51a: 열교환수단
61a, 61b, 61c: 유입포트
61d: 귀환용 유입포트
62a, 62b, 62c: 유출포트
64: 돌출 스크류
151, 51: 외부통
153, 53: 내부통
154, 54: 회전축
152, 52: 유체통로
155: 와류

도면

도면1

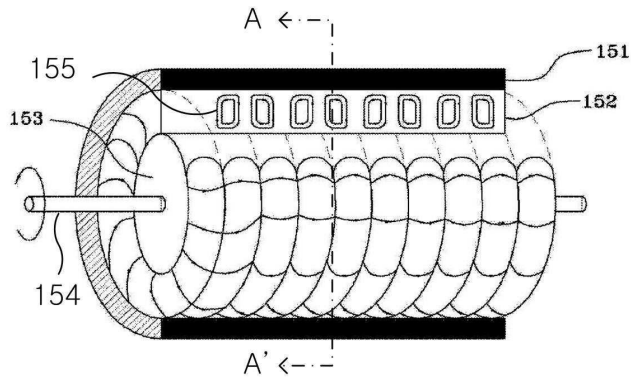
(a)

Durene (1,2,4,5-tetramethylbenzene)	
Molecular weight	134.22
Melting point	79.2 °C
Boling point	196 °C
Use	Semiconductor film , Textile, organics synthesis

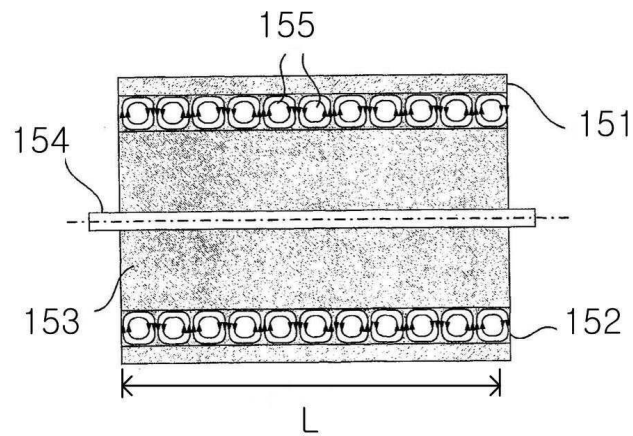
(b)

Process	Distillation	Melt crystallization
Yield	75 %	80%
Purity	97 %	99%
Reaction temp	Over 196 °C	Process temp 0 °C ~ 40 °C Energy consumption : decrease 70% over

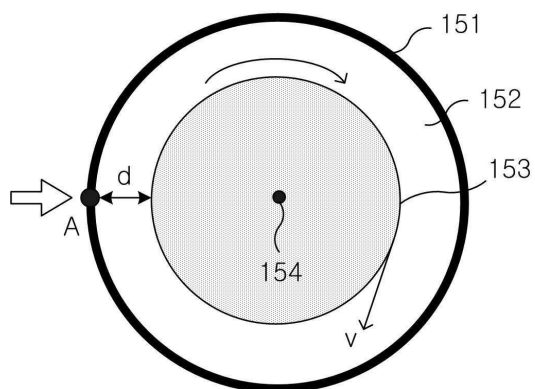
도면2



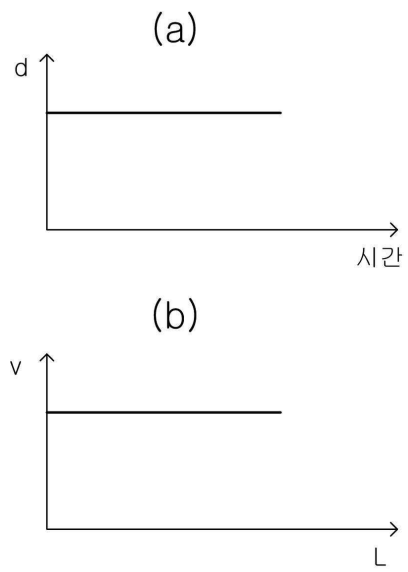
도면3



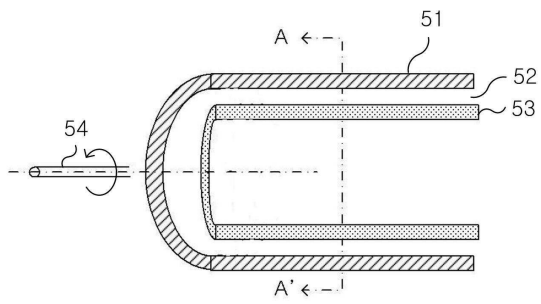
도면4



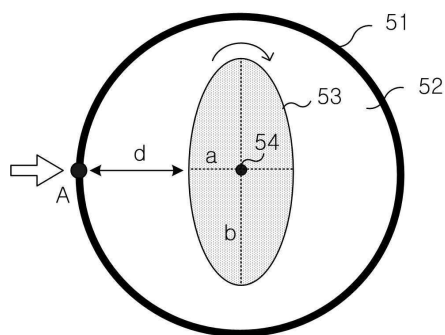
도면5



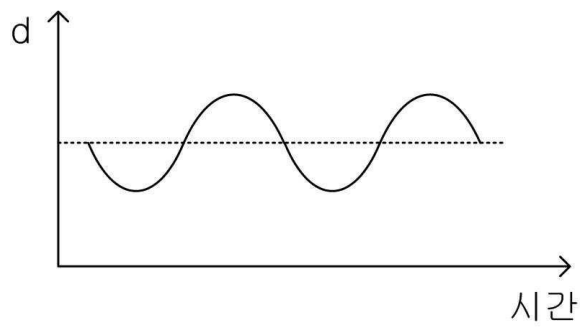
도면6



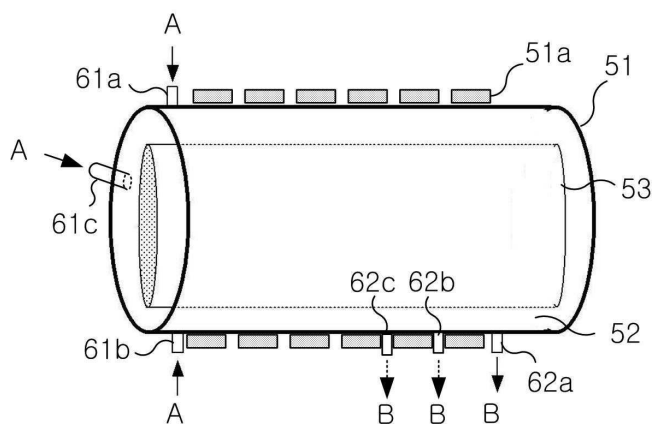
도면7



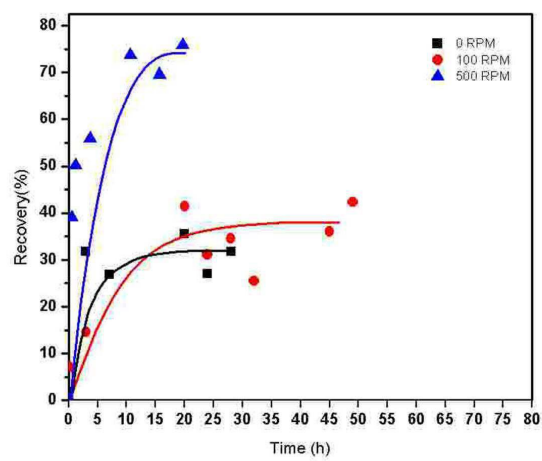
도면8



도면9

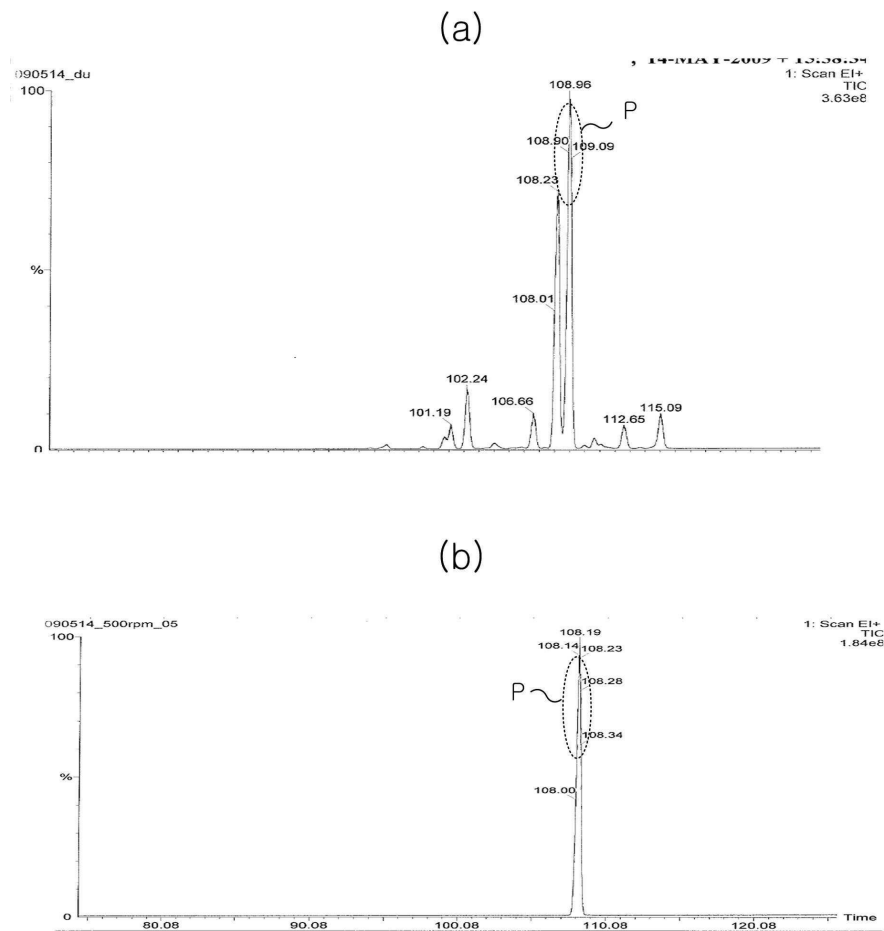


도면10

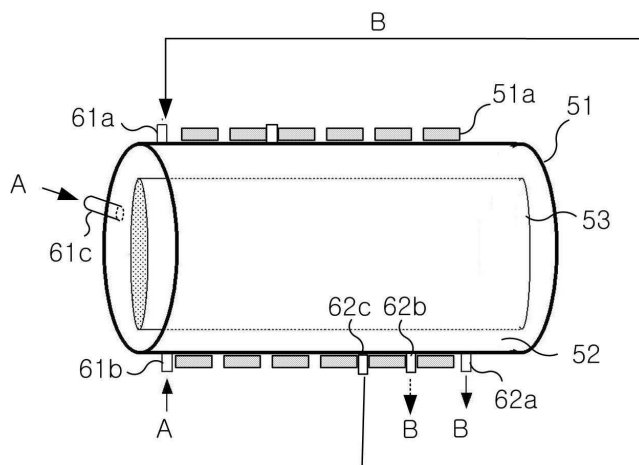


실험 조건	회수율	순도
㉠ 0 RPM	30 %	100 %
㉡ 100 RPM	42 %	100 %
㉢ 500 RPM	73 %	100 %

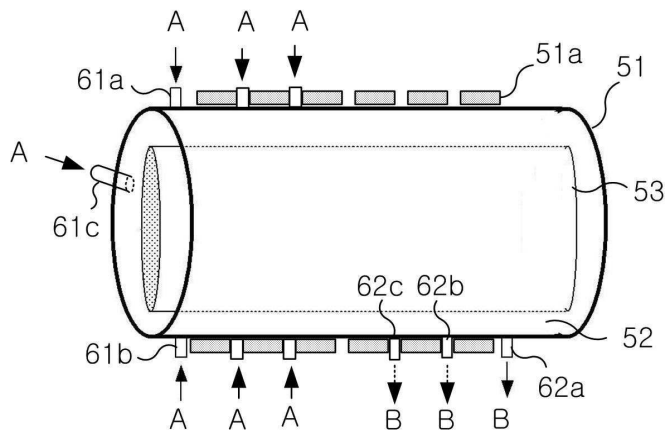
도면11



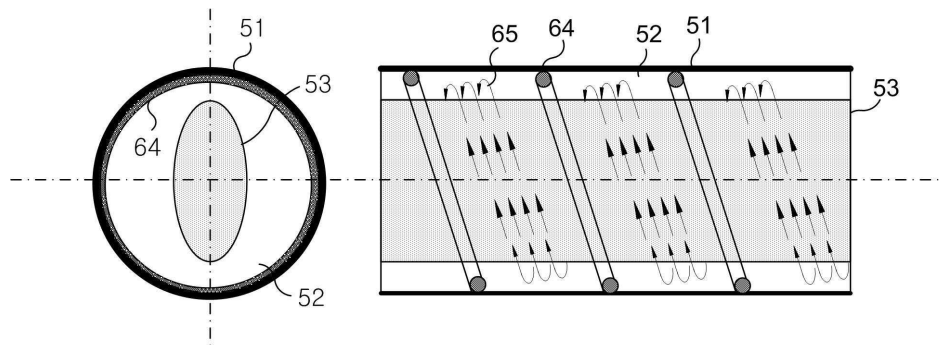
도면12



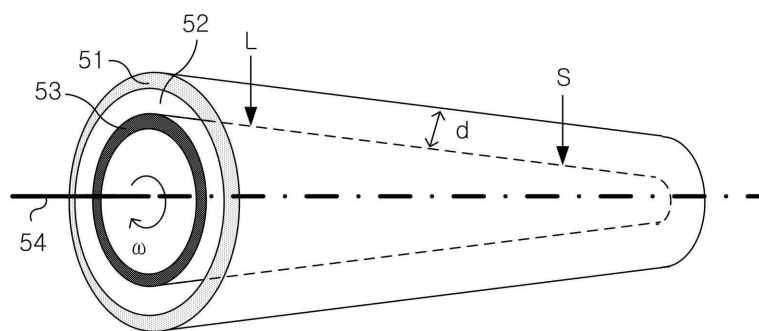
도면13



도면14



도면15



도면16

