(12) 按照专利合作条约所公布的国际申请

(19) 世界知识产权组织
国 际 局

(43) 国际公布日
2012 年 9 月 20 日 (20.09.2012)

WIPO | PCT

(10) 国际公布号
WO 2012/122827 A1

(51) 国际专利分类号:
C11C 3/04 (2006.01)

(21) 国际申请号: PCT/CN2011/083135

(22) 国际申请日: 2011 年 11 月 29 日 (29.11.2011)

(25) 申请语言: 中文

(26) 公布语言: 中文

(30) 优先权:
201110062699.0 2011 年 3 月 15 日 (15.03.2011) CN

(71) 申请人 (对除美国外的所有指定国): **清华大学 (TSINGHUA UNIVERSITY)** [CN/CN]; 中国北京市海淀区清华园, Beijing 100084 (CN)。

(72) 发明人; 及
(75) 发明人/申请人 (仅对美国): **杜伟 (DU, Wei)** [CN/CN]; 中国北京市海淀区清华园, Beijing 100084 (CN)。 **刘德华 (LIU, Dehua)** [CN/CN]; 中国北京市海淀区清华园, Beijing 100084 (CN)。 **杨威 (YANG, Wei)** [CN/CN]; 中国北京市海淀区清华园, Beijing 100084 (CN)。

(74) 代理人: **永新专利商标代理有限公司 (NTD PATENT AND TRADEMARK AGENCY LIMITED)**; 中国北京市西城区金融大街 27 号投资广场 A 座 10 层, Beijing 100033 (CN)。

(81) 指定国 (除另有指明，要求每一种可提供的国家保护): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW。

(84) 指定国 (除另有指明，要求每一种可提供的地区保护): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), 欧亚 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), 欧洲 (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG)。

本国际公布:
— 包括国际检索报告(条约第 21 条(3))。

(54) **Title**: METHOD FOR PREPARING BIODIESEL USING FEEDSTOCK OIL

(54) **发明名称** : 一种利用油脂制备生物柴油的方法

(57) **Abstract**: A method for preparing a biodiesel using a feedstock oil. In the method, a certain quantity of the feedstock oil and a lipase is loaded into a single-stage or multi-stage enzymatic reactor, and aqueous ethanol is poured into the system during a reaction process. The method employs a scheme of using directly an ethanol fermentation crude product having a volume concentration of less than 80% to act as an acyl receptor in the preparation of the biodiesel. This effectively obviates distillation and dehydration processes in subsequent refining process for the ethanol, and uses directly the ethanol crude product to prepare the biodiesel, thus reducing significantly the raw material costs in the biodiesel preparation process, and allowing for a feedstock oil-to-biodiesel conversion rate greater than 90%.

(57) **摘要**:

一种利用油脂制备生物柴油的方法，其是将一定量的油脂和脂肪酶，装入一级或多级酶反应器中，并在反应过程中向体系中流加含水乙醇。该方法直接利用体积浓度在 80%以下的乙醇发酵粗产品作为酰基受体进行酶促油脂制备生物柴油的方法，可以有效省去乙醇在后续精制过程中的精馏和脱水等工序，直接以这种乙醇粗产品进行生物柴油的制备，可以显著降低生物柴油制备过程中的原料成本，且油脂原料转化生成生物柴油的得率超过 90%。

WO 2012/122827 A1

一种利用油脂制备生物柴油的方法

技术领域

本发明属于生物燃料合成技术领域，特别涉及一种以含水乙醇作为酰基受体的酶促油脂制备生物柴油的方法。

背景技术

生物柴油是由生物油脂原料与甲醇或乙醇通过酯交换反应生成的长链脂肪酸酯类物质，是一种新型的无污染可再生能源。目前生物柴油主要依赖化学法生产。化学法制备生物柴油存在以下缺点，如油脂原料中的游离脂肪酸和水严重影响反应的进行；生产过程中存在严重的“三废”排放等。利用生物酶法合成生物柴油具有反应条件温和、无污染物排放以及具有广泛的油脂原料适用性等优点，符合绿色化学的发展方向，因而日益受到人们的重视。目前已经工业化生产的生物柴油主要以甲醇作为酰基受体。而来自于可再生原料的乙醇，近年来作为酰基受体用于生物柴油的制备已逐渐引起人们的关注。

与甲醇相比，乙醇可以由可再生的淀粉质原料发酵制备，可作为生物柴油的制备原料。然而，由这些淀粉质发酵制备的乙醇粗产品浓度一般在80%（体积比）以下，需经过繁琐的后续蒸馏以及脱水处理才能得到浓度高于99%的乙醇，大大增加了生物柴油的制备成本。

发明内容

本发明的目的是提供一种直接以发酵粗产品乙醇作为酰基受体进行酶促油脂制备生物柴油的方法。

为了实现本发明目的，本发明的一种利用油脂制备生物柴油的方法，其是将一定量的油脂和脂肪酶，装入一级或多级酶反应器中，并在反应过程中向体系中流加含水乙醇。

本发明的目的还可以采用以下的技术措施来进一步实现。

前述的利用油脂制备生物柴油的方法，其是将一定量的油脂以及基于每克油脂质量 20-2000 个酶活单位的脂肪酶，装入一级或多级酶反应器中，并在反应过程中向体系中流加体积浓度为 5%-80%的乙醇，乙醇和油脂的摩

尔比为 3-6：1，反应温度 20℃～50℃，反应时间 3－10 小时。

优选地，其是将一定量的油脂以及基于每克油脂质量 500-1500 个酶活单位的脂肪酶，装入一级或多级酶反应器中，并在反应过程中向体系中流加体积浓度为 35%-70%的乙醇，乙醇和油脂的摩尔比为 4-5：1，反应温度 25℃～50℃，反应时间 5～9 小时。

前述的方法，所述的脂肪酶来源于南极假丝酵母（*Candida antarctica*）、嗜热丝孢菌（*Thermomyces lanuginosus*）、黑曲霉（*Aspergillus niger*）、米曲霉（*Aspergillus oryzae*）、米黑根毛霉（*Rhizomucor miehei*）和米根霉（*Rhizopus oryzae*）等中的一种或多种。

前述的方法，所述的油脂为生物油脂，包括植物油脂、动物油脂或微生物油脂。其中，所述的植物油脂为蓖麻油、棕榈油、菜籽油、大豆油、花生油、玉米油、棉子油、米糠油、麻风树油、文冠果油或小桐子油等；所述的动物油脂为鱼油、牛油、猪油或羊油等；所述的微生物油脂为酵母油脂或微藻类油脂等。

前述的方法，所述的油脂还包括废食用油或油脂精炼下脚料。其中，所述的废食用油为潲水油或地沟油等，所述的油脂精炼下脚料为酸化油等。

前述的方法，所述的乙醇来自于工业发酵乙醇粗产品或其它工业乙醇粗产品。

前述的方法，从反应开始时匀速或变速流加含水乙醇，3~4 小时流加完毕。

借由上述技术方案，本发明至少具有下列优点及有益效果：

本发明的利用油脂制备生物柴油的方法，直接利用乙醇发酵粗产品（体积浓度在80%以下）作为酰基受体进行酶促油脂制备生物柴油，可以有效省去乙醇在后续精制过程中的精馏和脱水等工序，直接以这种乙醇粗产品进行生物柴油的制备，可以显著降低生物柴油制备过程中的原料成本，且油脂原料转化生成生物柴油的得率超过90%，因此，具有明显的经济效益和环境效益。

具体实施方式

以下实施例用于说明本发明，但不用来限制本发明的范围。

以下实施例中所用的试剂和材料均为市售商品，

实施例 1

加入10g菜籽油以及基于单位油脂质量200个标准酶活（200U/g菜籽油）的来源于米曲霉（*Aspergillus oryzae*）的固定化脂肪酶，控温40℃，再将体积浓度为5%的乙醇（乙醇与油脂摩尔比为3：1）在3个小时内匀速加入。反应6小时，体系中脂肪酸单酯收率为92%。

实施例 2

加入10g蓖麻油以及基于单位油脂质量300个标准酶活的来源于米曲霉（*Aspergillus oryzae*）的固定化脂肪酶，控温50℃，在将体积浓度为10%的乙醇（乙醇与油脂摩尔比为4：1）在前4个小时内匀速加入。反应6小时，体系中脂肪酸单酯收率为90%。

实施例 3

加入10g大豆油以及基于单位油脂质量300个标准酶活的来源于南极假丝酵母（*Candida antarctica*）的固定化脂肪酶，控温50℃，在将体积浓度为10%的乙醇（乙醇与油脂摩尔比为4：1）在前4个小时内匀速加入。反应6小时，体系中脂肪酸单酯收率为93%。

实施例 4

加入10g猪油以及基于单位油脂质量300个标准酶活的来源于南极假丝酵母（*Candida antarctica*）的固定化脂肪酶，控温50℃，再将体积浓度为20%的乙醇（乙醇与油脂摩尔比为3：1）在前3个小时内匀速加入。反应6小时，体系中脂肪酸单酯收率为82%。

实施例 5

加入10g潲水油以及基于单位油脂质量300个标准酶活的来源于米曲霉（*Aspergillus oryzae*）的固定化脂肪酶，控温50℃，再将体积浓度为10%的乙醇（乙醇与油脂摩尔比为4：1）在前4个小时内匀速加入。反应6小时，体系中脂肪酸单酯收率为94%。

实施例 6

加入10g棉籽油以及基于单位油脂质量1000个标准酶活的来源于米黑根毛霉（*Rhizomucor miehei*）*i*的固定化脂肪酶，控温40℃，再将体积浓度

为20%的乙醇在反应前4个小时内匀速加入（乙醇与油脂的摩尔比控制在4.5：1）。反应5小时，体系中脂肪酸单酯收率为95%。

实施例 7

加入10g麻风树油以及加入基于单位油脂质量2000个标准酶活的来源于米根霉（*Rhizopus oryzae*）的固定化脂肪酶，控温30℃，再将体积浓度为30%的乙醇在反应前5个小时内匀速加入（乙醇与油脂的摩尔比为6：1）。反应8小时，体系中脂肪酸单酯收率为92%。

实施例 8

加入10g棕榈油以及基于单位油脂质量800个标准酶活的来源于嗜热丝孢菌（*Thermomyces lanuginosus*）的液体脂肪酶，控温45℃，再将体积浓度为80%的乙醇（乙醇与油脂的摩尔比为3）在4个小时内匀速加入。反应8小时，体系中脂肪酸单酯收率为94%。

实施例 9

加入10g酵母油脂以及基于单位油脂质量400个标准酶活的来源于南极假丝酵母（*Candida antarctica*）的液体脂肪酶，控温50℃，再将体积浓度为50%的乙醇（乙醇与油脂的摩尔比控制在5：1）在4个小时内匀速加入。反应8小时，体系中脂肪酸单酯收率为92%。

实施例 10

加入10g小桐籽油以及基于单位油脂质量800个标准酶活的来源于南极假丝酵母（*Candida antarctica*）的液体脂肪酶，控温40℃，再将体积浓度为30%的乙醇（乙醇与油脂的摩尔比为6：1）在5个小时内匀速加入。反应8小时，体系中脂肪酸单酯收率为95%。

实施例 11

加入10g藻类油脂以及基于单位油脂质量2000个标准酶活的来源于米曲霉（*Aspergillus oryzae*）的固定化脂肪酶，控温20℃，再将体积浓度为30%的乙醇在5个小时内匀速加入（乙醇与油脂的摩尔比为6：1）。反应10小时，体系中脂肪酸单酯收率为92%。

实施例 12

加入10g鱼油以及基于单位油脂质量500个标准酶活的来源于米黑根毛

霉（*Rhizomucor miehei*）*i*的液体脂肪酶，控温30℃，再将体积浓度为20%的乙醇（乙醇与油脂摩尔比为4：1）在4个小时内匀速加入。反应8小时，体系中脂肪酸单酯收率为93%。

实施例 13

加入10g玉米油以及基于单位油脂质量600个标准酶活的来源于米曲霉（*Aspergillus oryzae*）的固定化脂肪酶，控温50℃，再将体积浓度为70%的乙醇（乙醇与油脂的摩尔比为5：1）在4个小时内匀速加入。反应10小时，体系中脂肪酸单酯收率为90%。

实施例 14

加入10g猪水油以及基于单位油脂质量500个标准酶活的来源于米黑根毛霉（*Rhizomucor miehei*）*i*的液体脂肪酶，控温35℃，再将体积浓度为5%的乙醇（乙醇与油脂的摩尔比为5：1）在4个小时内匀速加入。反应8小时，体系中脂肪酸单酯收率为93%。

实施例 15

加入10g酸化油以及基于单位油脂质量500个标准酶活的来源于米曲霉（*Aspergillus oryzae*）的液体脂肪酶，控温40℃，然后再变速加入体积浓度为20%的乙醇（乙醇与油脂的摩尔比为5：1），30%的乙醇（基于乙醇与油脂的摩尔数）在反应前2小时匀速加完，剩下的70%的乙醇在接下来的2个小时内匀速加完。总共反应8小时，体系中脂肪酸单酯收率为92%。

实施例 16

加入10g蓖麻油以及基于单位油脂质量800个标准酶活的来源于南极假丝酵母（*Candida antarctica*）的液体脂肪酶，控温45℃，然后再变速加入体积浓度为10%的乙醇（乙醇与油脂的摩尔比为6：1），40%的乙醇（基于乙醇与油脂的摩尔数）在反应前2小时匀速加完，剩下的60%的乙醇在接下来的2个小时内匀速加完。总共反应8小时，体系中脂肪酸单酯收率为92%。

实施例 17

加入10g地沟油以及基于单位油脂质量2000个标准酶活的来源于米曲霉（*Aspergillus oryzae*）的液体脂肪酶，控温35℃，然后再变速加入体积浓度为80%的乙醇（乙醇与油脂的摩尔比为4：1），10%的乙醇（基于乙醇与

油脂的摩尔数）在反应前1小时匀速加完，剩下的90%的乙醇在接下来的3个小时内匀速加完。总共反应8小时，体系中脂肪酸单酯收率为95%。

实施例 18

加入10g蓖麻油以及加入基于单位油脂质量200个标准酶活的来源于米根霉（*Rhizopus oryzae*）的液体脂肪酶和基于单位油脂质量300个标准酶活的来源于嗜热丝孢菌（*Thermomyces lanuginosus*）的液体脂肪酶，控温30℃，再将体积浓度为30%的乙醇在反应前5个小时内匀速加入（乙醇与油脂的摩尔比为6：1）。反应8小时，体系中脂肪酸单酯收率为96%。

实施例 19

加入10g棕榈油以及基于单位油脂质量400个标准酶活的来源于嗜热丝孢菌（*Thermomyces lanuginosus*）的液体脂肪酶和基于单位油脂质量100个标准酶活的来源于南极假丝酵母（*Candida antarctica*）的液体脂肪酶，控温45℃，再将体积浓度为80%的乙醇（乙醇与油脂的摩尔比为3：1）在4个小时内匀速加入。反应8小时，体系中脂肪酸单酯收率为95%。

实施例 20

加入10g潲水油以及基于单位油脂质量200个标准酶活的来源于米根霉（*Rhizopus oryzae*）的固定化脂肪酶和基于单位油脂质量300个标准酶活的来源于南极假丝酵母（*Candida antarctica*）的固定化脂肪酶，控温55℃，再将体积浓度为50%的乙醇（乙醇与油脂的摩尔比控制在4：1）在4个小时内匀速加入。反应6小时，体系中脂肪酸单酯收率为96%。

虽然，上文中已经用一般性说明及具体实施方案对本发明作了详尽的描述，但在本发明基础上，可以对之作一些修改或改进，这对本领域技术人员而言是显而易见的。因此，在不偏离本发明精神的基础上所做的这些修改或改进，均属于本发明要求保护的范围。

权利要求

1．一种利用油脂制备生物柴油的方法，其特征在于，将一定量的油脂和脂肪酶，装入一级或多级酶反应器中，并在反应过程中向体系中流加含水乙醇。

2．根据权利要求 1 所述的方法，其特征在于，将一定量的油脂以及基于每克油脂质量 20-2000 个酶活单位的脂肪酶，装入一级或多级酶反应器中，并在反应过程中向体系中流加体积浓度为 5%-80%的乙醇，乙醇和油脂的摩尔比为 3-6：1，反应温度 20℃～50℃，反应时间 3－10 小时。

3．根据权利要求 2 所述的方法，其特征在于，将一定量的油脂以及基于每克油脂质量 500-1500 个酶活单位的脂肪酶，装入一级或多级酶反应器中，并在反应过程中向体系中流加体积浓度为 35%-70%的乙醇，乙醇和油脂的摩尔比为 4-5：1，反应温度 25℃～50℃，反应时间 5～9 小时。

4．根据权利要求 1-3 任一项所述的方法，其特征在于，所述的脂肪酶来源于南极假丝酵母（*Candida antarctica*）、嗜热丝孢菌（*Thermomyces lanuginosus*）、黑曲霉（*Aspergillus niger*）、米曲霉（*Aspergillus oryzae*）、米黑根毛霉（*Rhizomucor miehei*）和米根霉（*Rhizopus oryzae*）中的一种或多种。

5．根据权利要求 1-3 任一项所述的方法，其特征在于，所述的油脂为生物油脂，包括植物油脂、动物油脂或微生物油脂。

6．根据权利要求 5 所述的方法，其特征在于，所述的植物油脂为蓖麻油、棕榈油、菜籽油、大豆油、花生油、玉米油、棉子油、米糠油、麻风树油、文冠果油或小桐子油；所述的动物油脂为鱼油、牛油、猪油或羊油；所述的微生物油脂为酵母油脂或微藻类油脂。

7．根据权利要求 1-3 任一项所述的方法，其特征在于，所述的油脂还包括废食用油或油脂精炼下脚料。

8．根据权利要求 7 所述的方法，其特征在于，所述的废食用油为潲水油或地沟油，所述的油脂精炼下脚料为酸化油。

9．根据权利要求 1-3 任一项所述的方法，其特征在于，所述的乙醇来自于工业发酵乙醇粗产品或其它工业乙醇粗产品。

10．根据权利要求 1-3 任一项所述的方法，其特征在于，从反应开始时匀速或变速流加含水乙醇，3~4 小时流加完毕。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/CN2011/083135

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C11C 3/04 (2006.01) i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC：C11C 3/-

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPI；EPODOC；CNKI；CNPAT； bio-diesel, ester, ethanol, enzyme

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	CN1640991A（UNIV. HUAZHONG SCI.&TECHNOLOGY）20.Jul 2005（20.07.2005） Description, page 2, line 6 to page 3, line 17	1，4-10
A	CN101333450A （LONG Huajun）31.Dec. 2008（31.12.2008）claims 1-7	1-10
A	CN1436834A（UNIV. QINGHUA）20.Aug. 2003（20.08.2003）claims 1-36	1-10
A	WO2010047480A2（UNIV. KANGNEUNG-WONJU NAT. IND. ACAD. COOP. et al.）29.Apr. 2010（29.04.2010）abstract	1-10

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☒ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&"document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
12.Jan. 2012(12.01.2012)	**15.Mar. 2012(15.03.2012)**
Name and mailing address of the ISA State Intellectual Property Office of the P. R. China No. 6, Xitucheng Road, Jimenqiao Haidian District, Beijing 100088, China Facsimile No. (86-10) 62019451	Authorized officer LI, Zheng Telephone No. (86-10) **82245996**

Form PCT/ISA /210 (second sheet) (July 2009)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/CN2011/083135

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
CN1640991A	20.07.2005	CN1295301C	17.01.2007
CN101333450A	31.12.2008	NONE	
CN1436834A	20.08.2003	WO2004081158A1	23.09.2004
		CN1181161C	22.12.2004
		US2006257986A1	16.11.2006
		US7473791B2	06.01.2009
WO2010047480A2	29.04.2010	KR20100045231A	03.05.2010
		WO2010047480A3	29.07.2010

国际检索报告

国际申请号
PCT/CN2011/083135

A. 主题的分类

C11C 3/04 (2006.01) i

按照国际专利分类(IPC)或者同时按照国家分类和 IPC 两种分类

B. 检索领域

检索的最低限度文献(标明分类系统和分类号)

IPC：C11C 3/-

包含在检索领域中的除最低限度文献以外的检索文献

在国际检索时查阅的电子数据库(数据库的名称，和使用的检索词（如使用）)

WPI；EPODOC；CNKI；CNPAT；生物柴油，油脂，含水乙醇，乙醇，酶，bio-diesel, ester, ethanol, enzyme

C. 相关文件

类　型*	引用文件，必要时，指明相关段落	相关的权利要求
X	CN1640991A（华中科技大学）20.7 月 2005（20.07.2005）说明书第 2 页第行至第 3 页第 17 行	1，4-10
A	CN101333450A （龙军华）31.12 月 2008（31.12.2008）权利要求 1-7	1-10
A	CN1436834A（清华大学）20.8 月 2003（20.08.2003）实施例 1-36	1-10
A	WO2010047480A2（UNIV. KANGNEUNG-WONJU NAT. IND. ACAD. COOP. et al.）29.4 月 2010（29.04.2010）说明书摘要	1-10

☐ 其余文件在 C 栏的续页中列出。　　☒ 见同族专利附件。

* 引用文件的具体类型：

"A" 认为不特别相关的表示了现有技术一般状态的文件

"E" 在国际申请日的当天或之后公布的在先申请或专利

"L" 可能对优先权要求构成怀疑的文件，或为确定另一篇引用文件的公布日而引用的或者因其他特殊理由而引用的文件（如具体说明的）

"O" 涉及口头公开、使用、展览或其他方式公开的文件

"P" 公布日先于国际申请日但迟于所要求的优先权日的文件

"T" 在申请日或优先权日之后公布，与申请不相抵触，但为了理解发明之理论或原理的在后文件

"X" 特别相关的文件，单独考虑该文件，认定要求保护的发明不是新颖的或不具有创造性

"Y" 特别相关的文件，当该文件与另一篇或者多篇该类文件结合并且这种结合对于本领域技术人员为显而易见时，要求保护的发明不具有创造性

"&" 同族专利的文件

国际检索实际完成的日期	国际检索报告邮寄日期
12. 1 月 2012(12. 01. 2012)	**15.3 月 2012 (15.03.2012)**

ISA/CN 的名称和邮寄地址：
中华人民共和国国家知识产权局
中国北京市海淀区蓟门桥西土城路 6 号 100088
传真号：　(86-10)62019451

受权官员
李征
电话号码：(86-10) **82245996**

国际检索报告

关于同族专利的信息

国际申请号
PCT/CN2011/083135

检索报告中引用的专利文件	公布日期	同族专利	公布日期
CN1640991A	20.07.2005	CN1295301C	17.01.2007
CN101333450A	31.12.2008	无	
CN1436834A	20.08.2003	WO2004081158A1	23.09.2004
		CN1181161C	22.12.2004
		US2006257986A1	16.11.2006
		US7473791B2	06.01.2009
WO2010047480A2	29.04.2010	KR20100045231A	03.05.2010
		WO2010047480A3	29.07.2010