



Bogotá D.C., 16 de noviembre de 2023

Doctora

EDNA MARCELA RAMÍREZ OROZCO

Directora División de Nuevas Creaciones

Superintendencia de Industria y Comercio

E. S. D.

Referencia: Expediente No **NC2020/0012385**

Asunto: Respuesta al requerimiento de fondo expedido dentro de la solicitud de patente titulada: **"MÉTODO DE OBTENCIÓN DE ÓXIDOS DE PRECURSORES DE CARBONO DERIVADOS DE LA INDUSTRIA PETROLEO Y GAS Y SUS PRODUCTOS"** - Oficio N° **10826** de **29 de junio de 2023**

Solicitantes: **ECOPETROL S.A.**

Respetada directora,

LUZ MARA HERRERA HERRERA en mi condición de apoderada del solicitante de la patente de la referencia; encontrándome dentro de los términos legales previstos, doy repuesta al oficio No. **10826** relacionado en el asunto, según el cual, como resultado del examen de patentabilidad realizado a la solicitud de la referencia, la Dirección encuentra que "la materia objeto de solicitud no cumple con algunos requisitos establecidos en la Decisión, con fundamento en los siguientes aspectos" que abordaré uno a uno:



"(...) 3. De la solicitud de patente

3.1. Reivindicaciones (...)"

Observación 1

El despacho indica que "(...) Teniendo en cuenta lo establecido en el artículo 30 de la Decisión 486 de 2000 de la Comisión de la Comunidad Andina:

"Las reivindicaciones definirán la materia que se desea proteger mediante la patente. Deben ser claras y concisas y estar enteramente sustentadas por la descripción. (...)"

Esta oficina informa que:

El capítulo reivindicatorio no es claro, toda vez que los elementos esenciales de la invención, que deberían ser parte de la reivindicación principal, se encuentran distribuidos en diferentes reivindicaciones. De acuerdo con lo anterior, se sugiere replantear el capítulo reivindicatorio, de manera que la reivindicación independiente incluya todas las características esenciales de la invención que se desea proteger.

Se sugiere traducir en castellano la palabra "mesh" que se encuentra en la reivindicación 2 y colocar el equivalente en micras o mm.

En las reivindicaciones 7 y 8, el término: "al menos", es impreciso, por lo cual, no permite distinguir la invención del estado de la técnica. Se sugiere sustituirlo por términos precisos o rangos concretos.

En la reivindicación 1 se menciona (coque y asfalteno), (H₂SO₄, HNO₃, H₃PO₄) y (peróxido, KMnO₄, ozono, oxígeno), y no es claro si todos deben estar en la mezcla, o si es una selección de los mismos. Se sugiere mejorar la redacción de la reivindicación.



Las unidades de medida "horas", "rpm" y "miliBar" mencionadas en las reivindicaciones 3, 4, 5, 8 y 10 no corresponden a las establecidas por el Sistema Internacional de Unidades, por lo tanto, se solicita hacer las conversiones respectivas.

Tal y como se encuentra redactada las etapas e) y f) en la reivindicación independiente 1, mencionan lo mismo, se sugiere dar claridad.

La expresión: "como", en la reivindicación 3 precediendo una característica no es limitativa, porque hace opcional la característica y no limita el alcance de la reivindicación. Se sugiere incluir las características opcionales o preferentes en una reivindicación dependiente.

En consecuencia, es necesario que allegue las aclaraciones o modificaciones correspondientes para dar cumplimiento a lo establecido en el citado artículo.

Respuesta1.

Estamos de acuerdo con las observaciones del despacho y por ende, procedimos a replantear el capítulo reivindicatorio realizando los ajustes sugeridos, así:

- Los elementos esenciales que se encontraban distribuidos en diferentes reivindicaciones de la invención se trasladaron a la reivindicación principal 1.
- Se retiró la expresión "menos 100 y menos 200 mesh" de la reivindicación 2, reemplazándolo por "reducción de tamaño".
- Se retiró el término: "al menos" de las reivindicaciones 7 y 8.
- Se aclaró en la reivindicación 1 que corresponde a etapas similares.
- Para aclarar que en la etapa b) reclamada en la reivindicación 1 no se presenta una mezcla de diferentes tipos de ácidos orgánicos, ni de agentes oxidantes, se retiró de esta el ácido sulfúrico y se dejaron únicamente el ácido nítrico (HNO₃) y como agente oxidante, el ozono.



- Las unidades de medida "horas", "rpm" y "miliBar" mencionadas en las reivindicaciones 3, 4, 5, 8 y 10 se pasaron al Sistema Internacional de Unidades.
- Se corrigió el error presentado en la reivindicación 1, etapa f) modificando el término "sólido" por "líquido" para aclarar que las etapas e) y f) en la reivindicación independiente 1, corresponde a procesos diferentes.
- La expresión: "como", en la reivindicación 3 fue retirado.

"(...) **3.2. Descripción** (...)"

Observación 2.

En cuanto al capítulo descriptivo, el despacho indica que *"(...) Revisado el capítulo descriptivo de la solicitud, este no divulga la invención de manera suficientemente clara y completa, para que una persona capacitada en la materia pueda ejecutarla, incumpliendo de esta forma lo establecido en el artículo 28 de la Decisión 486 de la Comisión de la Comunidad Andina.*

Traducir en castellano la palabra "mesh" que se encuentra en la página 13, y colocar el equivalente en micras o mm.

Las unidades de medida "horas", "rpm" y "miliBar" mencionadas en las páginas 13, 14, 16, 17 y 18 no corresponden a las establecidas por el Sistema Internacional de Unidades, por lo tanto, se solicita hacer las conversiones respectivas.

Se debe tener en cuenta que, de acuerdo con el artículo 34 de la citada Decisión, dicha modificación no podrá ampliar la divulgación inicial; por lo que, en caso de agregar nuevos elementos en la solicitud, la descripción modificada no será aceptada (...)"

**Respuesta 2.**

Consideramos que el capítulo descriptivo constituye una divulgación lo suficientemente clara y completa de la tecnología reclamada para su comprensión, de forma tal que permite que una persona capacitada en la materia técnica pueda ejecutarla.

En efecto, la descripción incluye todo lo indicado por el mencionado artículo 28 de la decisión 486 de la CAN, a saber, el sector tecnológico al cual aplica la invención; el estado del arte de la tecnología; la descripción de la invención, explicando el problema técnico y cómo la invención lo soluciona; diferencias y ventajas con respecto a tecnologías anteriores; la respectiva reseña sobre los dibujos; y finalmente, la descripción de cómo se puede llevar a la práctica o ejecutar la invención, conforme al conocimiento que se generó en el proceso de investigación e implementación de la invención, utilizando todos los medios pertinentes para ello, como ejemplos, referencias, dibujos, etc.

No obstante, lo anterior, se modificó el capítulo descriptivo con el fin de realizar pequeños ajustes de forma y mejorar la redacción, de manera que permita su mejor entendimiento.

En cuanto a la traducción de mesh y el sistema de unidades, como se mencionó en la respuesta inmediatamente anterior, se realizaron los ajustes indicados, retirando la medida de tamizaje mesh y convirtiendo al Sistema Internacional de Medidas las unidades señaladas.

Continúa el despacho:



"(...) 4. Determinación del Estado de la Técnica (...)"

El despacho señala que *"(...) La fecha para determinar el estado de la técnica es el día de 01 de octubre de 2020 a la fecha de presentación.*

Consultadas las fuentes de información con que se cuenta, se encontraron los siguientes documentos que anticipan el objeto de esta solicitud:

Ítem	Documento	Título	Fecha de publicación
D1	WO2014140399	"Method for producing pregraphitic material oxide, graphene oxide or graphene from pregraphitic materials and products produced by said method"	19 de septiembre de 2014

D1¹ divulga un método para producir un producto seleccionado del grupo que consiste en óxido de material pregrafítico, óxido de grafeno y grafeno, caracterizado porque comprende transformar al menos un material pregrafítico en el producto sin tratamiento de grafitización. Preferentemente, el material pregrafítico es coque (comercial o preparado a partir de breas, no sólo de petróleo sino también de carbón o sintéticas) (Resumen).

5. Examen de Patentabilidad

De acuerdo con lo establecido en el artículo 14 de la Decisión 486 de 2000 de la Comisión de la Comunidad Andina, en el cual se establecen los requisitos de patentabilidad objeto



de la solicitud en estudio, esta Oficina presenta a continuación el análisis de los requisitos de patentabilidad.

5.1. Novedad

Teniendo en cuenta lo señalado en el artículo 16 de la Decisión 486 de 2000 de la Comisión de la Comunidad Andina, la reivindicación independiente 1 (NC2020/0012385 del 01 de octubre de 2020) refiere a: "Un método para la obtención de óxidos de precursores de carbono derivados de la industria del petróleo y gas, caracterizado porque comprende las siguientes etapas:". A continuación, se presenta la tabla comparativa entre el objeto reivindicado y los documentos encontrados en el estado de la técnica:

CARACTERÍSTICAS ESENCIALES	D1
Un método para la obtención de óxidos de precursores de carbono derivados de la industria del petróleo y gas, caracterizado porque comprende las siguientes etapas:	Método de obtención de grafeno que comprende (Reiv. 1. 6 y 8)
a. Pretratamiento físico de los precursores de carbono (coque y asfalteno).	Previamente al tratamiento del material pregrafítico (es coque) se muele o tamiza hasta un tamaño de al menos 100 micrómetros, preferentemente entre 70100 micrómetros. (Reiv. 2, 6, 8 y 9)
b. Dispersión de precursores de carbono en medio con agua desionizada y con diferentes tipos de ácidos inorgánicos (H2SO4, HNO3, H3PO4)	Se realiza mediante tratamiento químico de los materiales pregrafíticos utilizando como reactivos nitrato de sodio, permanganato de potasio, ácido sulfúrico, peróxido de hidrógeno, agua destilada y agua desionizada. (Reiv. 13)



<i>c. Oxidación</i> <i>con agentes oxidantes inorgánicos (peróxido, KMnO₄, ozono, oxígeno).</i>	<i>Separación y/o purificación del sólido óxido obtenido por oxidación de los materiales pregrafíticos en b) (Reiv. 8)</i> <i>El paso b) se realiza mediante tratamiento químico de los materiales pregrafíticos utilizando como reactivos (...), permanganato de potasio, (...), peróxido de hidrógeno (...) (Reiv. 13).</i>
<i>d. Separación de las fracciones sólidas y líquidas conteniendo los óxidos de precursores de carbono.</i>	<i>d) se realiza mediante la separación de las láminas de óxido de grafeno.</i> <i>(Reiv. 17)</i>
<i>e. Obtención de los productos oxidados de la fracción sólida del proceso de separación sólido/líquido.</i>	<i>Obtención de óxido de grafeno a partir del óxido sólido obtenido en c) (Reiv. 8)</i>
<i>f. Obtención de los productos oxidados de la fracción sólida del proceso de separación sólido/líquido</i>	<i>Obtención de grafeno a partir del óxido de grafeno en d) (Reiv. 8)</i>

(...)”

Observación 3.

“(...) De acuerdo con la comparación realizada anteriormente se concluye que la materia de la reivindicación 1 no es nueva.

Adicionalmente, D1 menciona que el método comprende las etapas: a) molienda o tamizado del material pregrafítico a un tamaño inferior a 100 micrómetros micrómetros, preferentemente entre 70-100 micrómetros micrómetros (Reiv. 8) (...)”

**Respuesta 3.**

A continuación, se presentan argumentos para sustentar por qué consideramos que D1 no afecta la novedad de la presente invención:

El método descrito en la anterioridad **D1** corresponde a una adaptación de métodos clásicos de oxidación de grafito tales como el de *Hummers* o el de *Marcano* (*Hummers and Offeman, 1958, JACS, 80 (6), 1339; Marcano et al., 2010, ACS Nano, 4(8), 4806-4814*), para obtener óxido de grafito, óxido de grafeno o grafeno, con la particularidad de que, en lugar de grafito, se parte de materiales de carbono pregrafítico (coque carboquímico comercial, coque carboquímico sintético, coque de petróleo premium o coque de petróleo súper premium, todos de alto contenido de carbono). Estos tipos de materiales pregrafíticos son obtenidos por tratamientos térmicos a temperaturas de hasta 1500°C (preferiblemente máximo 1000°C) aplicados a materias primas seleccionadas tales como alquitranes de hulla, o breas semisintéticas de aceite de antraceno o residuos del petróleo o breas del petróleo. Cabe destacar que tanto el óxido de grafeno, como el grafeno son materiales bidimensionales (estructuras planares) y que se pueden obtener solo si previo a la oxidación, se aplican procesos de exfoliación al grafito para liberar las láminas que lo componen. Es por esto que en el método de D1 se emplean tratamientos de separación laminar y etapas de transformación con sustancias tales como NaNO_3 y KMnO_4 en medio ácido (H_2SO_4 , H_3PO_4 o mezclas de ellos) para llevar a cabo la oxidación de material pregrafítico, la cual se detiene por la adición de peróxido de hidrógeno (H_2O_2) una vez oxidado el material pregrafítico. Tal como en todos los métodos relacionados con oxidación de grafito con KMnO_4 , en el método de D1 el peróxido de hidrógeno tiene la función de neutralizar los iones de permanganato (agente oxidante) que están en exceso y así terminar la reacción de oxidación del material pregrafítico.

En cambio, en la presente solicitud de patente se describen diferentes rutas de oxidación independientes una de otra para la obtención de óxidos de precursores de carbono a



partir de derivados de procesos de refinación (por ejemplo coque o fondos de vacío o breas de petróleo) y/o mejoramiento de crudos (por ejemplo asfaltenos), con diferencias en los procesos de pretratamiento de las materias primas, en los agentes oxidantes empleados (KMnO_4 , H_2O_2 , ozono u oxígeno), en las condiciones de reacción y en los procesos de separación y recuperación de los productos, que en ningún caso corresponden a óxido de grafeno o grafeno. Igualmente, el método de la presente solicitud de patente no está orientado a obtener materiales bidimensionales y por tanto, no se practican etapas de separación laminar. Así mismo, en ningún modo de realización los productos obtenidos mediante la presente invención son sometidos a tratamientos de reducción térmica a altas temperaturas o reducción química con hidrógeno o reducción electroquímica, de hecho, los procesos de transformación de las materias primas de la presente solicitud de patente nunca ocurren a temperaturas superiores a 120 °C.

Adicionalmente, mientras que en **D1** se usan métodos de pretratamiento de las materias primas (materiales pregrafíticos) con procesos tales como la exfoliación con disolventes mediada por ultrasonido, la intercalación con ácidos y el choque térmico, con el único objetivo de lograr la separación laminar; mientras que en la presente invención no se realiza ningún proceso de separación laminar y en cambio, luego del acondicionamiento del tamaño de partícula se realiza una dispersión del precursor de carbono sólido en un medio acuoso acidificado y se procede con la reacción de oxidación para obtener posteriormente óxidos de precursores de carbono, tanto en fase sólida (precipitados) como en fase líquida (solubilizados), luego de realizar una etapa de filtración o centrifugación (Ver por ejemplo, **Figuras 1A** y **1B**). El método reivindicado en la presente solicitud de patente a través de las etapas, condiciones y reactivos resulta ser más eficiente y seguro que el descrito en D1, ya que no se emplea el mismo conjunto de reactivos de D1 (nitrato de sodio, permanganato de potásico, ácido sulfúrico, agua oxigenada y agua destilada), ni las mismas etapas de pretratamiento, reacción y separación de los productos.



Debido a las anteriores diferencias en los métodos, los óxidos precursores de carbono producidos mediante la presente invención tienen características esencialmente diferentes a los de la anterioridad D1. Para iniciar, los productos oxidados obtenidos en fase sólida de la presente solicitud de patente no tienen estructura bidimensional, ya que no se realiza ningún proceso de separación laminar (exfoliación). Adicionalmente, los productos de la presente solicitud de patente tienen diferencias estructurales en cuanto a las proporciones de grupos funcionales oxigenados dependiendo de las condiciones de oxidación utilizadas, del agente oxidante y del material de partida. Así, por ejemplo, cuando se realizaron análisis por espectroscopía FT-IR de los productos de oxidación de asfaltenos se observó que la reacción de oxidación usando KMnO_4 como oxidante favorece la formación de grupos OH, mientras que la oxidación con peróxido incrementa la formación enlaces C=O de tipo ácido carboxílico. Esto soporta que la distribución de grupos funcionales varía dependiendo de la ruta de oxidación.

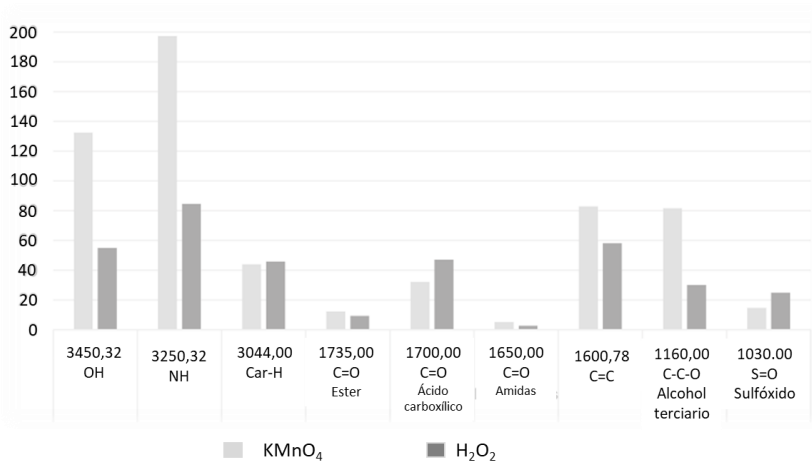


Figura A.
Distribución de

grupos funcionales de los óxidos de Asfaltenos obtenidos por oxidación con KMnO_4 y con H_2O_2 . El eje Y corresponde la intensidad en unidades arbitrarias.

Además, este efecto no sólo podría deberse al agente oxidante empleado, sino también a las características estructurales de los precursores de carbono usados. Los asfaltenos



son comúnmente referidos como la fracción menos soluble del petróleo, debido a la presencia de compuestos de alta aromaticidad, peso molecular, y polaridad. Más aun, son solubles en solventes aromáticos, como tolueno y benceno, e insolubles en alcanos, como el *n*-pentano o *n*-heptano. Adicionalmente, poseen gran diversidad estructural con contenidos variables de heteroátomos (N, S, O) y metales pesados (Ni, Fe, V) y agrupadas generalmente en dos tipos de estructuras macromoleculares, islas y archipiélagos (Alshareef, H. (2020) *Asphaltenes: Definition, Properties, and Reactions of Model Compounds, Energy and Fuels*, 34(1), 16-30; Mullins, O. C. et al. (eds.) (2007) *Asphaltenes, Heavy Oils and Petroleomics*, Springer, New York). Todas estas características de los asfaltenos hacen que sus procesos de oxidación procedan de forma particular, dependiendo del agente oxidante y las condiciones de reacción. Por tanto, no es acertado afirmar que el método descrito en la anterioridad D1 es un método idóneo para convertir los asfaltenos en materiales tales como los óxidos de precursores pregrafíticos, los óxidos de grafeno o el grafeno.

Por otro lado, no es posible usar en D1 el mismo método utilizado en la presente solicitud para la finalidad que esta última busca, debido a las características del coque de petróleo, el cual es un coproducto resultante del proceso de coquización retardada de fondos de destilación de petróleo a temperaturas que nunca son superiores a 600°C. Debido a las condiciones de proceso de coquización retardada y la composición altamente heterogénea de las cargas empleadas, el grado de grafitización de coque obtenido es insignificante. El coque de petróleo consiste mayoritariamente de carbono (rangos de 80-90%), y está constituido principalmente por carbono aromático y una pequeña fracción de carbono alifático, pero con cantidades variables de contenido de azufre, nitrógeno, oxígeno y metales (Ni, V). La mayoría del azufre y el nitrógeno se encuentra asociado a la matriz de carbono, y los metales a compuestos quelantes o petroporfirinas (Sun, Y.-D. et al. (2019) *Research for structure and composition of coke on spent commercial residue hydrotreating catalysts along HDM bed. Journal of Fuel Chemistry and Technology*, 47(2), 167-173.; Gazulla, M.F et al. (2016) *Determination of organic oxygen in petroleum cokes and coals. Microchemical Journal*, 126, 538-544).



Por lo tanto, tampoco es acertado afirmar que el método descrito en la anterioridad D1 pueda ser aplicado para convertir coque de petróleo tal como se obtiene de la refinería (es decir, sin practicarle procesos térmicos adicionales de grafitización) en materiales tales como los óxidos de precursores pregrafíticos, los óxidos de grafeno o el grafeno.

Más aun, los análisis de composición química indican que hay diferencias en las relaciones de C/O, tanto de los precursores de carbono, como de los productos de oxidación generados por los tipos de oxidación usados (Ver Tablas 1A y 1B de la presente solicitud de patente). Adicionalmente, en la tabla 1 se presenta la composición elemental de muestras de productos obtenidos mediante modos de realización de la presente invención. Claramente se observa la incorporación de oxígeno en de los materiales de partida por efecto de los procesos de la presente solicitud de patente.

Tabla 1. Composición elemental de los precursores de carbono y productos de la presente solicitud de patente.

	C (%)	H (%)	N (%)	O (%)	S (%)	Metales (%)	Relación C/O
Coque	90.6	3.8	1.9	0.7	3.1	0.225	180
Óxido de coque - KMnO₄	56	3.3	1.2	36.4	3.1		2
Óxido de coque - H₂O₂	68.4	3.5	1.6	23.7	2.6		3.8
Asfalteno	83.4	7.4	1.5	2.8	4.8	0.28	40
Óxido de asfalteno - KMnO₄	63.7	5.9	1.2	22.5	6.8		3.8
Óxido de asfalteno - H₂O₂	72.5	6.9	1.3	15.2	4.1		6.3



Adicionalmente, los análisis de difracción de Rayos X mostraron que los asfaltenos usados tenían un grado de aromaticidad mayor que el coque, lo cual podría explicar en parte su diferencia de reactividad cuando se usa el mismo agente oxidante. Particularmente se observaron diferencias composicionales en los grupos funcionales, tanto en tipo como en abundancia en los mismos asfaltenos, variando tan solo el tipo de agente oxidante (H_2O_2 , ozono, oxígeno o KMnO_4).

Por otro lado, tanto en la presente solicitud de patente como en la anterioridad D1, las primeras etapas de los métodos son la reducción de tamaño por molienda y el tamizaje, ya que son las formas convencionales en los procesos *top-down* de pretratar un precursor sólido en tamaños de partícula adecuados para realizar reacciones químicas en un medio acuoso. En la presente solicitud de patente se identificó que el tamaño de partículas y el método de reducción de tamaño usado determina la facilidad de dispersión en el medio de reacción y el grado de oxidación del producto obtenido. En el desarrollo de la presente solicitud de patente, se identificó que los niveles de oxidación de los productos y las proporciones de fracciones sólidas y líquidas variaban significativamente al cambiar el tamaño de partículas de los materiales de partida (Ver Esquemas del proceso en las Figuras 1A y 1B de la presente solicitud de patente).

Durante el desarrollo de la tecnología objeto de la presente solicitud se determinó que se produce una mayor oxidación en tamaños de partículas menores a 100 micras, no sólo por su facilidad de dispersión, sino por su mayor contacto con el agente oxidante. A modo de ejemplo, ver Figura B1 y B2, donde se ilustra el efecto del tamaño de partícula del precursor de coque de petróleo sobre composición elemental los productos de oxidación. No obstante, tamaños de partícula excesivamente pequeños (menor a 50 micras) disminuyen significativamente el rendimiento de las fracciones de los productos sólidos oxidados obtenidos. Es claro entonces, que el tamaño de partícula si afecta el proceso de obtención de productos más oxidados y solubles, ya que menores tamaños de partículas generan menores razones C/O, lo que implica un mayor nivel de adición de átomos de oxígeno a los precursores de carbono.

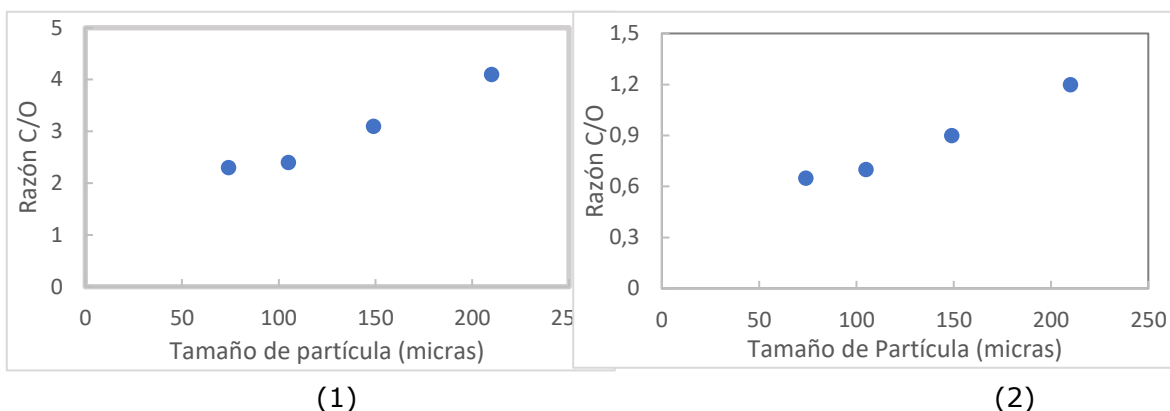


Figura B. Efecto del tamaño de partícula de carbono derivado de coque de petróleo sobre la razón C/O de los productos de oxidación de coque de petróleo en fase sólida (1) y en fase líquida (2), usando H_2O_2 como agente oxidante.

En síntesis, ante las diferencias expuestas con respecto a la anterioridad D1, consideramos que la materia de la reivindicación 1 de la presente solicitud de patente sí es nueva

Observación 4.

El despacho indica en el requerimiento que "(...) La reivindicación dependiente 2 tampoco cumple con el requisito de novedad (...)"

Respuesta 4.

Respetuosamente, disentimos de lo manifestado por el despacho con respecto a la reivindicación 2, en virtud de que, aunque existen similitudes en el tipo de pretratamientos que se le aplican a las materias primas, en la anterioridad **D1** se trabaja con rangos de tamaño de partícula entre 70-100 micras para viabilizar la exfoliación de las capas de grafeno presentes en el precursor mediante el uso de agentes de



intercalación como ácidos inorgánicos, lo cual es indispensable para la obtención de óxido de grafeno y grafeno; en tanto que en la presente solicitud de patente la molienda se lleva a cabo para facilitar la dispersión del sólido en el medio de reacción y así facilitar la oxidación de los precursores de carbono, como por ejemplo, la reacción de un precursor de carbono sólido con un agente oxidante como O₃, o en medio líquido de reacción con un agente como el H₂O₂, reivindicados en la presente solicitud de patente.

Consideramos por tanto que la reivindicación dependiente 2 si cumple con el requisito de novedad.

El despacho continúa

"(...) **5.2.Nivel Inventivo** (...)"

"(...) Teniendo en cuenta lo señalado en el artículo 18 de la Decisión 486 de 2000 de la Comisión de la Comunidad Andina, la reivindicación dependiente 3 (NC2020/0012385 del 01 de octubre de 2020) refiere a: "El método de la descrito en la reivindicación 1, de la etapa b, caracterizado". A continuación, se presenta la tabla comparativa entre el objeto reivindicado y los documentos encontrados en el estado de la técnica:

CARACTERÍSTICAS ESENCIALES	D1
Un método para la obtención de óxidos de precursores de carbono derivados de la industria del petróleo y gas, caracterizado porque comprende las siguientes etapas:	Método de obtención de grafeno que comprende (Reiv. 1. 6 y 8)
<u>Reivindicación 1</u> a. Pretratamiento físico de los precursores de carbono (coque y asfalteno).	Previamente al tratamiento del material pregrafítico (es coque) se muele o tamiza hasta un tamaño de al menos 100 micrómetros, preferentemente entre 70100 micrómetros. (Reiv. 2, 6, 8 y 9)



<i>b. Dispersión de precursores de carbono</i> <i>en medio con agua desionizada y con diferentes tipos de ácidos inorgánicos</i> <i>(H₂SO₄, HNO₃, H₃PO₄)</i>	<i>Se realiza mediante tratamiento químico de los materiales pregrafíticos utilizando como reactivos nitrato de sodio, permanganato de potasio, ácido sulfúrico, peróxido de hidrógeno, agua destilada y agua desionizada.</i> <i>(Reiv. 13)</i>
<i>c. Oxidación</i> <i>con agentes oxidantes inorgánicos (peróxido, KMnO₄, ozono, oxígeno).</i>	<i>Separación y/o purificación del sólido óxido obtenido por oxidación de los materiales pregrafíticos en b) (Reiv. 8)</i> <i>El paso b) se realiza mediante tratamiento químico de los materiales pregrafíticos utilizando como reactivos (...), permanganato de potasio, (...), peróxido de hidrógeno (...) (Reiv. 13).</i>
<i>d. Separación de las fracciones sólidas y líquidas conteniendo los óxidos de precursores de carbono.</i>	<i>d) se realiza mediante la separación de las láminas de óxido de grafeno.</i> <i>(Reiv. 17)</i>
<i>e. Obtención de los productos oxidados de la fracción sólida del proceso de separación sólido/líquido.</i>	<i>Obtención de óxido de grafeno a partir del óxido sólido obtenido en c) (Reiv. 8)</i>
<i>f. Obtención de los productos oxidados de la fracción sólida del proceso de separación sólido/líquido</i>	<i>Obtención de grafeno a partir del óxido de grafeno en d) (Reiv. 8)</i>
<u><i>Reivindicación 3</i></u> <i>En la etapa b, caracterizado porque éstos se dispersan en medio acuoso (agua desionizada)</i> <i>Y</i> <i>con ácidos inorgánicos como ácido fórmico (95% v/v), ácido nítrico (68 %p/v), ácido sulfúrico (98% v/v) o fosfórico (85% p/v), en relaciones másicas de precursor de carbono a ácido en rango 3-1, bajo agitación ultrasónica a diferentes tiempos en un rango 0.5-3h, utilizando un baño ultrasónico (400 W de salida, 20 kHz) y en un rango de temperatura entre 4 - 37 °C.</i>	<i>Dispersan en medio acuoso agua desionizada y con ácidos inorgánicos como ácido sulfúrico (20% v/v) (Reiv. 14)</i> <i>--- (no se menciona la proporción) se realiza mediante tratamiento químico de los materiales pregrafíticos con relaciones entre los pesos del material pregrafítico/nitrato sódico/permanganato potásico de entre 1/1/7 y 1/1/3 (Reiv. 14).</i> <i>--- (No se menciona el rango 3-1)</i> <i>bajo agitación ultrasónica a diferentes tiempos en un rango en 60 minutos (Reiv. 19, Pág. 10 líneas 3 a 8 y Pág. 15 líneas 7 y 8).</i> <i>--- y</i>



	En un rango de temperatura ambiente (Pág. 15, líneas 7 y 8).
--	--

(...)”

Observación 5.

“(...) D1 es considerado como el estado de la técnica más cercano a la invención definida en la reivindicación 3, ya que divulga un método para producir un producto seleccionado del grupo que consiste en óxido de material pregrafítico, óxido de grafeno y grafeno, caracterizado porque comprende transformar al menos un material pregrafítico en el producto sin tratamiento de grafitización. Preferentemente, el material pregrafítico es coque (comercial o preparado a partir de breas, no sólo de petróleo sino también de carbón o sintéticas) (Resumen).

La diferencia entre la invención definida entre la reivindicación 3 y el método divulgado en D1 consiste en que la etapa b los ácidos orgánicos se emplean en proporciones de ácido fórmico (95% v/v), ácido nítrico (68 %p/v), ácido sulfúrico (98% v/v) o fosfórico (85% p/v), en que la elación másica de precursor de carbono a ácido está en el rango 3-1, y en la utilización de un baño ultrasónico (400 W de salida, 20 kHz).



No se evidencia un efecto asociado en incluir en la etapa b) que los ácidos orgánicos se encuentren en dichas proporciones, que la relación másica de precursor de carbono a ácido está en rango 3-1, y en la utilización un baño ultrasónico (400 W de salida, 20 kHz).

Por lo tanto, el problema técnico objetivo que pretende resolver esta invención se puede formular así: ¿Cómo modificar el método conocido en D1 para proporcionar otro método, alternativo?

Si bien el D1, no menciona específicamente en la etapa b las concentraciones del ácido, la relación másica de precursor de carbono a ácido y la utilizando un baño ultrasónico, D1 sí enseña que obtener grafeno mediante la transformación de un material pregrafítico que no ha sido sometido a un tratamiento de grafitización, estando basado en procesos tradicionales pero de forma más eficiente y rentablemente (Pág. 4, líneas 10 a 14), en donde, en el paso b) se transforma el material pregrafítico (coque) de a) en su óxido correspondiente se lleva a cabo mediante un tratamiento químico utilizando relaciones en peso de material pregrafítico/nitrato de sodio/permanganato de potasio de entre 1/1/7 a 1/1/3 dependiendo del material pregrafítico. Los volúmenes de reacción preferidos corresponden a 20 % en volumen para ácido sulfúrico y 80 % en volumen para peróxido de hidrógeno al 3 %, expresándose los porcentajes en volumen con respecto al volumen total de reacción, o también 20 % en volumen para ácido sulfúrico y 8 % en volumen para peróxido de hidrógeno y 72% para agua destilada, expresada nuevamente con relación al volumen total de reacción, pudiendo variar estas proporciones dependiendo preferentemente de las características del material (Pág. 8, líneas 15 a 26), por lo tanto, etapa b) que implica la transformación oxidativa del material pregrafítico (coque) de la etapa a) en el óxido correspondiente se realiza mediante, tratamiento químico o reducción, intercalación, choque térmico, exfoliación y reducción térmica del óxido de coque y reducción con hidrógeno (Pág. 8, líneas 3 a 8), facilitando la separación o dispersión de los precursores del carbono (Pág. 7, líneas 21 a 31 y pág. 8, líneas 1 y 2), es así que una persona en la materia entendería que con



dichos materiales y proporciones sería una selección y no habría ningún esfuerzo inventivo.

En consecuencia, la persona normalmente versada en la materia estaría motivada a incluir en la etapa b que los ácidos orgánicos se emplean en proporciones de ácido fórmico (95% v/v), ácido nítrico (68 %p/v), ácido sulfúrico (98% v/v) o fosfórico (85% p/v), una relación másica de precursor de carbono a ácido en rango 3-1 y un baño ultrasónico (400 W de salida, 20 kHz) en el método de D1, para así llegar al objeto de la reivindicación 3. Por lo cual se considera obvia (...)”

Respuesta 5

No es correcta la apreciación del despacho en cuanto a que el problema técnico que pretende resolver la presente invención podría formularse partiendo de D1 para proporcionar otro método alternativo. El método de la presente solicitud de patente no es un método alternativo al descrito en D1, teniendo en cuenta que existen diferencias claras entre estos, en aspectos tales como los precursores de carbono, el conjunto de reactivos y las etapas y condiciones de los procesos:

En la reivindicación 3 de la presente solicitud de patente se indica que a los precursores de carbono de la etapa a) de la reivindicación principal se les realiza dispersión en un medio acuoso en presencia de ácidos inorgánicos y que estos pueden ser ácido fórmico, ácido nítrico o fosfórico, de forma individual o en sus posibles combinaciones. Cuando el modo de realización de la presente solicitud de patente es con un agente oxidante en fase líquida, el rol de ácido inorgánico es inducir la solvatación de su superficie de las partículas de los precursores de carbono, lo cual disminuye su hidrofobicidad y por tanto facilita su dispersión en el medio acuoso en donde ocurre la reacción de oxidación. Por el contrario, en la anterioridad D1, al ser una adaptación de métodos clásicos de obtención de óxido de grafeno o grafeno por exfoliación oxidativa, el rol del ácido



sulfúrico es aumentar el espacio entre láminas o capas de grafeno en el material pregrafítico o del grafito, ya que puede intercalarse dentro de estas. El incremento en el espacio entre las láminas facilita la posterior exfoliación en un medio líquido.

En el caso de D1, la utilización de ácido sulfúrico es esencial ya que no cualquier ácido tiene la capacidad de intercalarse entre las láminas del material pregrafítico. En cambio, en la presente solicitud de patente la utilización de este ácido en particular es optativa. Entonces, claramente la etapa de dispersión de partículas sólidas que componen los precursores de carbono en un medio acuoso tal como el que se practica en la presente solicitud de patente, no es equivalente a la etapa de exfoliación de láminas de grafeno que componen las partículas de los materiales pregrafíticos de D1. Así que objetivo de la utilización de ácidos inorgánicos, tanto en la presente solicitud de patente como en D1, es diferente.

En cuanto al uso de relaciones másicas de precursor de carbono a ácido en el rango 3 a 1 y la utilización un baño ultrasónico se encontró en la presente invención que, debido a las características hidrofóbicas de los precursores de carbono y su tendencia a formar partículas aglomeradas, estas condiciones permiten realizar de forma eficiente la etapa de dispersión de las partículas de los precursores de carbono en el medio líquido. No consideramos que sea obvia la utilización de ácidos en las relaciones másicas especificadas, ni la utilización de ultrasonido cuando se aplica el método reivindicado a materias primas de alto carácter hidrofóbico tales como los de la presente solicitud de patente.

Adicionalmente, en **D1** se utilizan métodos para la obtención de óxido de grafeno y grafeno usando como precursores principalmente alquitranes de hulla, breas semisintéticas de aceite de antraceno, residuos del petróleo o breas del petróleo, promoviendo su grafitización a través de un tratamiento térmico. En cambio, en la presente solicitud de patente se usan diferentes tipos de precursores de carbono derivados de procesos de refinación tales como coque del petróleo, fondos de vacío,



entre otros, y de mejoramiento de propiedades reológicas de petróleo (upgrading) tales como asfaltenos, con diferentes fórmula química, estructura molecular, grados de grafitización, contenido de heteroátomos (N,S,O) y metales (Ej. Ni, V), y donde la oxidación no busca la generación de óxido de grafeno o grafeno, tal como lo reivindican los autores en todos los ejemplos de la anterioridad **D1** (Ver **ejemplos 1-6** de anterioridad **D1**) ya que los precursores usados, o tienen bajo nivel de grafitización, o son moléculas de gran variedad estructural (Mullins, O. C. et al. (eds.) (2007) *Asphaltenes, Heavy Oils and Petroleomics*, Springer, New York). Además, los respectivos óxidos de carbono en fase sólida o líquida obtenidos con la presente solicitud de patente poseen diferentes grados de oxidación (relaciones C/O diferentes), grupos funcionales oxigenados, contenido de metales, etc. (Ver Tablas 1A y 1B de la Presente Solicitud de Patente), así como nuevas propiedades estructurales que les permitan ser usados como materiales de carbono en diferentes tipos de aplicaciones. Por ejemplo, los compuestos oxidados solubilizados (fracción soluble) presentan propiedades de fluorescencia diferente dependiendo de modo de realización y del precursor de carbono utilizado. Los óxidos de asfaltenos presentaron una mayor intensidad de emisión al emplear luz ultravioleta como fuente de excitación mientras que en el caso de los óxidos de coque su emisión es mayor con luz azul. El rango de emisión para los óxidos de asfaltenos está en el orden de 440 a 480 nm y para el óxido de coque de 510 a 530 nm. Esta diferencia puede atribuirse principalmente al tamaño de los dominios aromáticos de ambos materiales, es decir, las moléculas fluorescentes de coque presentarían un mayor tamaño y conjugación, lo cual le permite emitir luz de mayor longitud de onda. (ver figura)

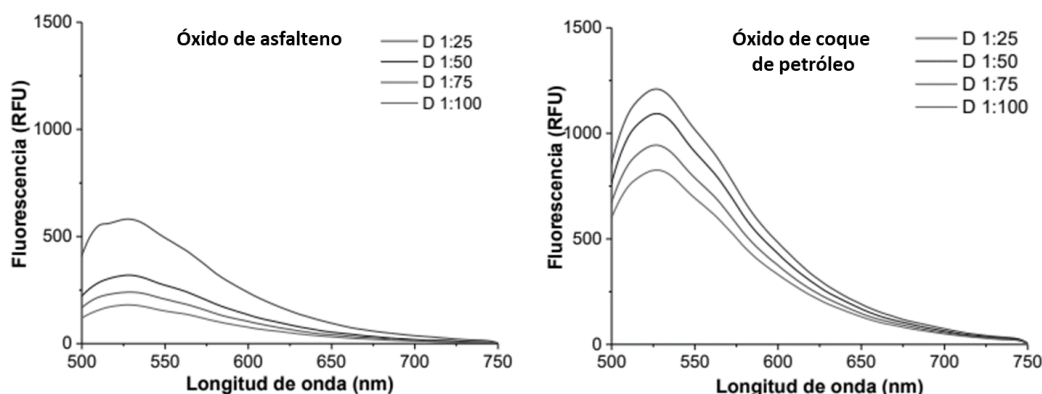


Figura C. Efecto de dilución de los óxidos de precursores de carbono solubles sobre la emisión de fluorescencia excitados a una longitud de excitación de 217 nm.

Aún más, existen diferencias importantes entre las etapas del proceso de oxidación descrito en la presente solicitud y las del método descrito en **D1**. En la anterioridad **D1**, se hacen pretratamientos diferentes a los usados en la presente solicitud de patente. Se llevan a cabo por ejemplo tratamientos térmicos (Ver ejemplo 2, anterioridad **D1**) mientras que en la presente solicitud no se requieren estos tratamientos para llevar a cabo el proceso de oxidación de los precursores de carbono y obtener los productos de interés, ya que no son de tipo laminar (bidimensional). En la anterioridad **D1** se lleva un pretratamiento térmico (rango 800 a 1500 °C) durante un tiempo de 0 a 2 h de los materiales precursores debido a que se busca la grafitización parcial del precursor, es decir, cambiar la configuración de la estructura del precursor de carbono a una estructura cristalina más ordenada, para posteriormente exfoliar el material pregrafitizado, oxidarlo con agentes oxidantes como KMnO_4 y así obtener a partir de este precursor pregrafitizado productos tales como óxido de grafeno y posteriormente grafeno (Sierra, U. et al. (2016) Cokes of different origin as precursors of graphene oxide. *Fuel*, 166, 400-403). Por esta razón, el proceso de la presente solicitud de patente es diferente, ya que los precursores de carbono no se someten a altas temperaturas, lo cual hace que los precursores no sean grafitizados, y que su posterior oxidación sea controlada por las condiciones de reacción, concentración y tipo de oxidantes, tiempos



de reacción y temperaturas del proceso que permitan obtener fracciones sólidas y líquidas con diferentes relaciones de C/O y grupos funcionales oxigenados distintos, dependientes de los tiempos y temperaturas de reacción, tamaño de partículas y relaciones de agente oxidante a precursor.

Además, en D1 se usan procesos de oxidación del material de carbono pregrafítico tratado térmicamente con KMnO_4 y NaNO_3 , usando adaptaciones del método de Hummers (*Hummers and Offeman, 1958, JACS, 80 (6), 1339*), mientras que en la presente solicitud de patente se usan diferentes agentes de oxidación, así como de condiciones de reacción para la obtención de nuevos precursores de carbono oxidados con nuevas propiedades funcionales. En la anterioridad D1 se trabaja en condiciones de reacción seleccionadas para la obtención de los óxidos de grafeno, que es el producto que se busca obtener a partir de los materiales pregrafíticos derivados de coque o coque premium con alto grado de grafitización. Por esta razón, se usan condiciones de reacción de bajas temperaturas para la oxidación (35 °C) mediante el método de Hummers, con agentes de oxidación como KMnO_4 en presencia de NaNO_3 , tiempos de reacción de 3 h y neutralización de los iones permanganato con H_2O_2 para detener la reacción de oxidación. En cambio, en la presente solicitud de patente se usan diferentes rutas de oxidación con diferentes tipos de agentes oxidantes. Por ejemplo, el uso de H_2O_2 como agente oxidante de los precursores de carbono, es posible bajo condiciones de reacción que no son obvias ni producto de procesos de optimización, dado que se requiere de condiciones de reacción con temperaturas de rangos de 35 a 120 °C (a presión atmosférica o bajo presión controlada) y concentraciones de hasta 30%p/v, así como con tiempos de reacción que van de 2 a 48 h, lo que permite obtener compuestos oxidados con valores diferentes de relación C/O, lo cual permite que a tiempos largos de reacción se mejoren las propiedades de dispersión y disolución de los óxidos en medios hidrofílicos; por consiguiente, eso hace que su dispersión y/o solubilización en medios polares y/o compuestos hidrofílicos sean diferentes entre la anterioridad **D1** y la presente solicitud de patente. En tanto que, a bajos tiempos de reacción y menores



concentraciones de agentes oxidantes, se obtienen compuestos con valores mayores de razones C/O, es decir, menor porcentaje de grupos oxigenados.

Los anteriores modos de realización no son obvios, ya que, dependiendo del agente oxidante o las condiciones de oxidación, así como el tipo de precursor y su estructura molecular (ej. asfaltenos) o macromolecular (ej. coque), se obtienen grupos funcionales oxigenados diferentes (Vittore et al., 2019, *Langmuir*, 35, 6, 2244-2250; Jung and Bielaswki, 2019, *Commun Chem* **2**, 113). En este sentido, se tienen también diferentes proporciones y tipos de grupos oxigenados de acuerdo con el tipo de agente de oxidación usado. Con KMnO_4 , se obtienen principalmente compuestos de grupos OH mientras que la oxidación con peróxido incrementa la formación enlaces $\text{C}=\text{O}$ de tipo ácidos carboxílicos. En consecuencia, dependiendo del tipo de agente oxidante, las condiciones de temperatura y el tiempo de reacción, se obtienen diferentes tipos de compuestos oxidados en fase sólida o líquida.

Adicionalmente, el proceso de oxidación que se menciona en la presente solicitud de patente consiste en una transformación fisicoquímica de precursores de carbono proveniente del petróleo que tiene unas características intrínsecas al tipo de proceso de producción de estos. Dado que los precursores de carbono que se empleas en la presente solicitud de patente y son, mayoritariamente, fracciones pesadas insolubles en solventes como n-heptano (asfaltenos) o productos del proceso de coquización retardada de una refinería (coque de petróleo), no consisten en materiales pregrafíticos. En la Figura E se presentan los difractorgramas de rayos X de los precursores de carbono típicos a los descritos en la presente solicitud de patente. Comúnmente para sustancias puras o de alto orden cristalino, las señales son angostas y definidas, sin embargo, dada la complejidad inherente de los asfaltenos, la diversidad estructural hace que la variedad de enlaces sea amplia, ensanchando las señales. Cuando se compara con el coque, se aprecia una disminución del ensanchamiento lo que indica dos cosas; un mayor orden estructural y una menor variedad de enlaces $\text{C}=\text{C}$. En la Tabla 2 se presentan los parámetros estructurales calculados DRX. El factor de aromaticidad, la distancia



interlaminar y la distancia intercadena obtenidos para muestras representativas de asfaltenos y coque de petróleo corresponden a materiales altamente amorfos.

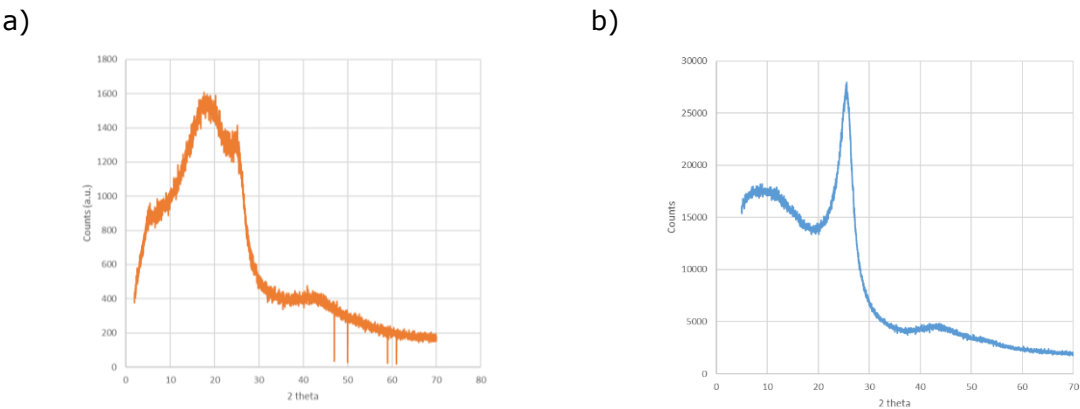


Figura E. Difractogramas obtenidos para las muestras analizadas mediante DRX, a) asfaltenos; b) coque de petróleo.

Tabla 2. Parámetros estructurales calculados DRX

Parámetro	Unidades	Asfaltenos	Coque de petróleo
Factor de aromaticidad	adimensional	0.65	0.29
Distancia interlaminar	dm (Å)	3.54	3.47
Distancia intercadena	dγ(Å)	5.12	9.30

En cambio, un material pregrafítico como al que hace referencia la anterioridad D1, es un material que tiene un ordenamiento tal que al ser calentado a una temperatura hasta los 2500 °C produce un material de tipo grafito (ver la Figura D para ilustración).

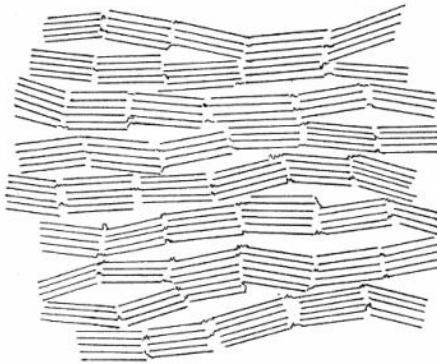


FIGURE 7. Schematic representation of the structure of a graphitizing (but non-graphitic) carbon.

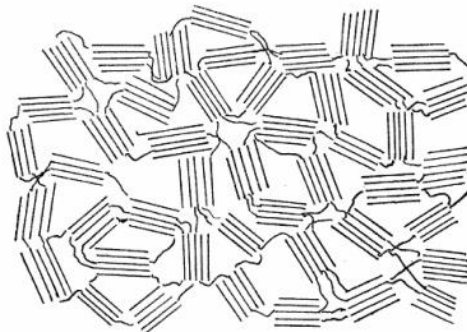


FIGURE 8. Schematic representation of the structure of a non-graphitizing carbon.

Figura D. Ordenamiento en materiales pre grafiticos y no grafiticos o no grafitizables

Así las cosas, la presente solicitud de patente se basa procesos para obtener óxidos de carbono y no óxidos de grafeno o grafeno, por una razón fundamental: los materiales que se emplean no son pregrafíticos, debido a que no tienen un ordenamiento molecular previo que pueda dar lugar a material de tipo pregrafítico o grafitico y, en consecuencia, no van a producir un óxido de grafeno o grafeno, como es el objeto de la reivindicación 1 de D1. Adicionalmente, esto tiene una consecuencia sobre el método de la presente solicitud de patente: como se ha mencionado anteriormente, el proceso de oxidación que emplea D1 es un método de Hummers, que no es un método idóneo para obtener óxidos empleando materiales amorfos como los mencionados en la presente invención.

Observación 6.



Finalmente, el despacho indica sobre la novedad de las reivindicaciones dependientes que "(...) Las reivindicaciones dependientes 4 a 10 no mencionan alguna característica que, junto con las características de la reivindicación independiente, aporte nivel inventivo al método de la reivindicación 3, por lo cual se considera que carece de nivel inventivo (...)"

Respuesta 6.

No es correcta la afirmación del despacho con relación al nivel inventivo de las reivindicaciones dependientes 4 a 10 de la presente solicitud de patente:

No coincidimos con la comparación realizada desde el despacho, en virtud que la anterioridad **D1** afecta el nivel inventivo de la presente solicitud. Las etapas descritas en anterioridad **D1** se usan para la obtención de óxido de grafeno y grafeno, ya que los métodos usados de molienda, los tamaños usados de precursores, así como los métodos de oxidación, recuperación y separación, se llevan a cabo para la obtención de este tipo de nanomateriales de carbono bidimensionales (estructura prácticamente plana), es decir, óxido de grafeno y grafeno; en cambio, la presente solicitud de patente es un método para la obtención de óxidos de precursores de carbono derivados de procesos de refinación y mejoramiento de crudo, tales como asfaltenos, coque, fondos, etc., y que utiliza diferentes rutas de oxidación, ya sea en medio líquido (KMnO_4 o H_2O_2 como agentes oxidantes) o en medio sólido (ozono u oxígeno), condiciones de temperatura y tiempos de reacción diferentes, y que no busca la obtención de un material derivado de grafito o pregrafito tales como el óxido de grafeno o su producto posterior de reducción (el grafeno), sino que busca materiales alternativos no bidimensionales, tales como óxido de coque, óxidos de asfaltenos, óxidos de fondos de vacío, entre otros, con características de funcionalidades químicas diferentes debido a sus diferentes grados de oxidación y tipos de grupos funcionales para ser usados como nuevos materiales basados en carbono derivados de subproductos del petróleo.



Los métodos usados en la presente solicitud de patente tienen diferencias sustantivas con respecto a los descritos en la anterioridad **D1**. Mientras que en la anterioridad **D1** se usa el proceso de oxidación clásico de *Hummers*, en el cual en medio ácido se usa KMnO_4 y NaNO_3 para la oxidación del material grafitico y posteriormente se añade H_2O_2 a la mezcla de reacción, de manera de detener la reacción (*Hummers and Offeman, 1958, JACS, 80 (6), 1339*) y facilitar la precipitación de óxido de grafeno, y donde, si bien se pueden variar las relaciones de agente oxidante, éstas se hacen bajo condiciones de reacción estándar. En cambio, en la presente solicitud de patente se usan tres tipos de agentes oxidantes de manera independiente: KMnO_4 , H_2O_2 y Ozono (Ver **Figuras 1A y 1B** de la solicitud de patente), y condiciones de reacción diferentes a las de **D1**, debido a que se tienen precursores de carbono diferentes a los de **D1**, que usan principalmente materiales pregrafíticos con alto grado de grafitización o que son grafitizados a condiciones altas de temperatura de reacción (Ver ejemplos **1 y 2** en anterioridad **D1**). En el caso de la presente solicitud de patente, no se lleva a cabo un pretratamiento térmico de los precursores de carbono para incrementar el grado de grafitización de los materiales de carbono, ya que sólo se someten a molienda y tamizado, para obtener un tamaño de partícula determinado y se someten posteriormente al proceso de oxidación química. A su vez, en la presente solicitud de patente las condiciones de reacción para los procesos de oxidación son diferentes. Se usan rangos de temperatura más amplios (rango 35 a 120 °C), tiempos de reacción más prolongados (2 a 48 h), diferentes razones másicas de agentes oxidantes a precursor, por ejemplo, de rangos de 8.3 a 33.3 g de H_2O_2 /g de precursor de carbono, para obtener productos de oxidación de los precursores de carbono derivados de petróleo en fase sólida y líquida.

Además, este proceso permite la obtención de compuestos oxidados con mejores propiedades polares e hidrofílicas, lo cual es inesperado, ya que se producen diferencias dependiendo del tipo, concentración de agente oxidante usado, así como de las condiciones de reacción usadas en el proceso de oxidación del precursor de carbono. Por esta razón, se recuperan no sólo la fracción sólida, sino que la líquida, ya que presentan diferentes propiedades químicas, grados de oxidación (relación C/O), y grupos



funcionales oxigenados. Por ejemplo, si se usa H₂O₂ como agente oxidante, se usan concentraciones y temperaturas más severas de reacción (hasta 120 °C) a las usadas en **D1** (no mayores a 85 °C), debido a que en estas condiciones se observó que es posible obtener diferentes relaciones C/O (Ver **Tabla 1A** y **1B** de la solicitud de patente) dependiendo del agente oxidante.

"(...) **6. Conclusión** (...)"

Observación 7.

El despacho indica que "(...) Los requisitos de Patentabilidad de la presente solicitud están afectados así:

Ítem	Documento	Reivindicaciones afectadas	Requisito que afecta
D1	WO2014140399	1 y 2	Novedad
		3 a 10	Nivel inventivo

(...)"

Respuesta 7

En conclusión, diferimos de la apreciación emitida por el derecho en cuanto a que las reivindicaciones 1 y 2 afectan el principio de novedad, ya los procesos de pretratamiento en la anterioridad **D1** se orienta a obtener grafitización del material pregrafítico y la posterior oxidación del material de carbono grafitizado (contenido mayor al 98% de C) por el método de *Hummers* adaptado para la síntesis de óxido de grafeno y la posterior reducción de este para la obtención de grafeno. En cambio, en la presente solicitud de patente, se tiene varias rutas de oxidación de los precursores de carbono, diferentes condiciones de reacción, como se ha explicado previamente y distintas proporciones de



compuestos y tipos de grupos oxigenados dependiendo del tipo de agente oxidante. Por otro lado, la presente solicitud de patente a través de su proceso reivindica la obtención de óxidos de precursores de carbono con diferentes grados de oxidación dependiendo del tipo de agente de oxidación, condiciones de reacción (tiempo, temperatura, presión) e incluso de tamaño de partícula, lo cual permite obtener fracciones tanto líquidas como sólidas de los productos oxidados, los cuales pueden ser usados en diferentes tipos de aplicaciones.

Además, consideramos que las reivindicaciones 3 a 10 poseen nivel inventivo, ya que reivindican la obtención de nuevos compuestos de carbono oxidados derivados de subproductos del petróleo en fracciones sólidas y líquidas. Los procesos de tratamiento con ácido se hacen a temperaturas y tiempos de reacción diferentes a las propuestas en **D1**, ya que en la anterioridad se busca la exfoliación del material oxidado, por lo que es una tecnología diferente a la propuesta en la presente solicitud de patente, en la cual se usa para facilitar dispersión de las partículas del material de carbono en el medio acuoso. Por otro lado, en la presente solicitud de patente se proponen diferentes rutas de oxidación, que permiten generar diferentes tipos de productos de oxidación, que pueden ser encontrados en fracciones sólidas y líquidas, con diferentes grupos funcionales dependiendo de la ruta de oxidación, y que pueden tener propiedades funcionales de fluorescencia en su fracción líquida, aspecto que no se considera en la anterioridad **D1**.

Presentación capítulo reivindicatorio ajustado

Finalmente, nos permitimos indicar que se propone un capítulo reivindicatorio ajustado, que reemplaza el capítulo reivindicatorio inicialmente presentado en la solicitud de patente original, con el fin de dar mayor claridad a la materia reivindicada y para incluir los ajustes solicitados por el Despacho. Es importante anotar que estos ajustes no implican de ninguna manera una ampliación de materia a la contenida en la solicitud originalmente presentada, por consiguiente, son precedentes, de conformidad con lo establecido en el Artículo 34 de la Decisión 486 que indica que "*El solicitante de una*



patente podrá pedir que se modifique la solicitud en cualquier momento del trámite. La modificación no podrá implicar una ampliación de la protección que correspondería a la divulgación contenida en la solicitud inicial Del mismo modo, se podrá pedir la corrección de cualquier error material”.

*De acuerdo con los argumentos y modificaciones presentados en este escrito, la solicitud de patente cumple con todos los requerimientos exigidos por la Decisión 486 de la Comisión de la Comunidad Andina y, teniendo en cuenta que se dio respuesta a las objeciones formuladas en el oficio número **10826**, atentamente solicito se continúe con el trámite de la presente solicitud y se proceda al otorgamiento de la patente de invención a la tecnología objeto de esta.*

Atentamente,

DocuSigned by:

D5444148A3FF48F...

LUZ MARA HERRERA HERRERA

C.C. 52.049.364 de Bogotá

T.P. 148094 del C. S. de la J.

Anexo: *Capitulo Reivindicatorio ajustado.*

Capitulo descriptivo ajustado