



N.º do Pedido:	BR102018068888-0	N.º de Depósito PCT:	
Data de Depósito:	17/09/2018		
Prioridade Unionista:	-		
Depositante:	UNIVERSIDADE FEDERAL DE MINAS GERAIS (BRMG)		
Inventor:	ANA PAULA DE CARVALHO TEIXEIRA; MARIA HELENA DE ARAUJO; LUISA EMANUELE MILAGRE; VITOR FERNANDES DE ALMEIDA; SARA SILVEIRA VIEIRA; TATIANA APARECIDA RIBEIRO DOS SANTOS BENFICA; MATEUS CARVALHO MONTEIRO DE CASTRO		
Título:	“Processo de produção de catalisador contendo nanoestruturas de carbono dopadas com nitrogênio, catalisador e uso do catalisador para remoção de h2s e sulfetos de efluentes líquidos e gasosos”		

2 - FERRAMENTAS DE BUSCA

3 - REFERÊNCIAS PATENTÁRIAS

4 - REFERÊNCIAS NÃO-PATENTÁRIAS

Autor/Publicação	Data de publicação	Relevância *
Minmin Liu; Ruizhong Zhang; Wei Chen. Graphene-Supported Nanoelectrocatalysts for Fuel Cells: Synthesis, Properties, and Applications, Chem. Rev. 2014, 114, 5117 – 516, 10.1021/cr400523y.	2014	N,I,Y
Lingzhi Wang; Jinlong Zhang; Feng Chen. Synthesis of hydrothermally stable MCM-48 mesoporous molecular sieve at low cost of CTAB surfactant, Microporous and Mesoporous Materials 122 (2009) 229–233, 10.1016/j.micromeso.2009.03.004	2009	I,Y
Philippe Serp; Philippe Kalck; Roselyne Feurer. Chemical Vapor Deposition Methods for the Controlled Preparation of Supported Catalytic Materials, Chem. Rev. 2002, 102, 3085 – 3128, 10.1021/cr9903508.	2002	I,Y

Luisa E. Milagre; Tatiana A. Ribeiro-Santos; Ana Paula C. Teixeira; Maria Helena Araujo. Utilização de Materiais Carbonáceos, obtidos pelo processo CVD a partir da sílica MCM-41, para a adsorção de etinilestradiol, Sociedade Brasileira de Química (SBQ), 39a Reunião Anual da Sociedade Brasileira de Química: Criar e Empreender, Goiânia, 2016, http://www.s bq.org.br/39ra/cdrom/resumos/T0635-1.pdf .	2016	I,Y
--	------	-----

Observações:

Rio de Janeiro, 1º de maio de 2023.

Adailson da Silva Santos
Pesquisador/ Mat. Nº 2335762
DIRPA / CGPAT III/DIPEQ
Deleg. Comp. - Port. INPI/DIRPA Nº
002/11

* Relevância dos documentos citados:

- A documento que define o estado geral da técnica, mas não é considerado de particular relevância;
- N documento de particular relevância; a invenção reivindicada não pode ser considerada nova quando o documento é considerado isoladamente;
- I documento de particular relevância; a invenção reivindicada não pode ser considerada dotada de atividade inventiva ou de ato inventivo quando o documento é considerado isoladamente

Y documento de particular relevância; a invenção reivindicada não pode ser considerada dotada de atividade inventiva quando o documento é combinado com um outro documento ou mais de um;

PN documento patentário, publicado após a data de depósito do pedido em exame, ou da prioridade requerida para o pedido em exame, cuja data de depósito, ou da prioridade reivindicada, é anterior a data de depósito do pedido em exame, ou da prioridade requerida para o pedido em exame; esse documento patentário pertence ao estado da técnica para fins de novidade, se houver correspondente BR, conforme o Art. 11 §2.º e §3.º da LPI.



SERVIÇO PÚBLICO FEDERAL
MINISTÉRIO DO DESENVOLVIMENTO, INDÚSTRIA, COMÉRCIO E SERVIÇOS
INSTITUTO NACIONAL DA PROPRIEDADE INDUSTRIAL

RELATÓRIO DE EXAME TÉCNICO

N.º do Pedido: BR102018068888-0 **N.º de Depósito PCT:**
Data de Depósito: 17/09/2018
Prioridade Unionista: -
Depositante: UNIVERSIDADE FEDERAL DE MINAS GERAIS (BRMG)
Inventor: ANA PAULA DE CARVALHO TEIXEIRA; MARIA HELENA DE ARAUJO; LUISA EMANUELE MILAGRE; VITOR FERNANDES DE ALMEIDA; SARA SILVEIRA VIEIRA; TATIANA APARECIDA RIBEIRO DOS SANTOS BENFICA; MATEUS CARVALHO MONTEIRO DE CASTRO
Título: “Processo de produção de catalisador contendo nanoestruturas de carbono dopadas com nitrogênio, catalisador e uso do catalisador para remoção de h₂s e sulfetos de efluentes líquidos e gasosos ”

PARECER

O presente pedido trata, inicialmente, da reação entre TEOS, CTAB e hidróxido de sódio. O sólido resultante é lavado, de preferência com água desionizada. O sólido obtido é seco a uma temperatura de 50 a 80°C durante 8-24 horas. Adiciona-se os metais à mistura obtida em uma porcentagem de 1-30% com 1-30% da massa total de água. A mistura resultante foi aquecida até a água evaporar completamente. Um processo CVD (Chemical Vapor Deposition) é usado para fazer o catalisador. O precursor obtido é aquecido em um forno a uma velocidade de 10-50° C/min por 1-5 horas e amônia em uma atmosfera de acetonitrila ou melanina, ureia e outras substâncias contendo nitrogênio ou uma mistura de metanol. O vapor é arrastado para o tubo dcomo e temperatura ambiente, onde ocorre a reação por meio de uma unidade de fluxo de nitrogênio ou argônio. Pretende-se produzir um catalisador com nanoestruturas de carbono para a desoxidação de sulfeto de hidrogênio e sulfetos em efluentes líquidos e gasosos. Ferro, cobalto, níquel, molibdênio e sais são os metais escolhidos para estarem presentes no catalisador contendo nanoestruturas de carbono, assim como nanoestruturas de carbono dopadas com nitrogênio.

Além das petições indicadas no quadro 1 a seguir, também considerou-se a seguinte documentação: Dec.neg. acesso ao pat.gen.nac.- Pet. 870180131297 de 17/09/2018; Requerimento de exame – Protocolo 800210285712 de 17/08/2021 (06 reivindicação(ões)). Os documentos citados no relatório descritivo do pedido em questão foram considerados e consultados durante a redação do presente parecer. Este exame foi realizado em ambiente digital considerando-se as seguintes petições:

Quadro 1 – Páginas do pedido examinadas
--

Elemento	Páginas	n.º da Petição	Data
Relatório Descritivo	1-6	870180131297	17/09/2018
Quadro Reivindicatório	1-2	870180131297	17/09/2018
Desenhos	1	870180131297	17/09/2018
Resumo	1	870180131297	17/09/2018

Quadro 2 – Considerações referentes aos Artigos 10, 18, 22 e 32 da Lei n.º 9.279 de 14 de maio de 1996 – LPI

Artigos da LPI	Sim	Não
A matéria enquadra-se no art. 10 da LPI (não se considera invenção)		x
A matéria enquadra-se no art. 18 da LPI (não é patenteável)		x
O pedido apresenta Unidade de Invenção (art. 22 da LPI)	x	
O pedido está de acordo com disposto no art. 32 da LPI	x	

Comentários/Justificativas

Quadro 3 – Considerações referentes aos Artigos 24 e 25 da LPI

Artigos da LPI	Sim	Não
O relatório descritivo está de acordo com disposto no art. 24 da LPI		x
O quadro reivindicatório está de acordo com disposto no art. 25 da LPI		x

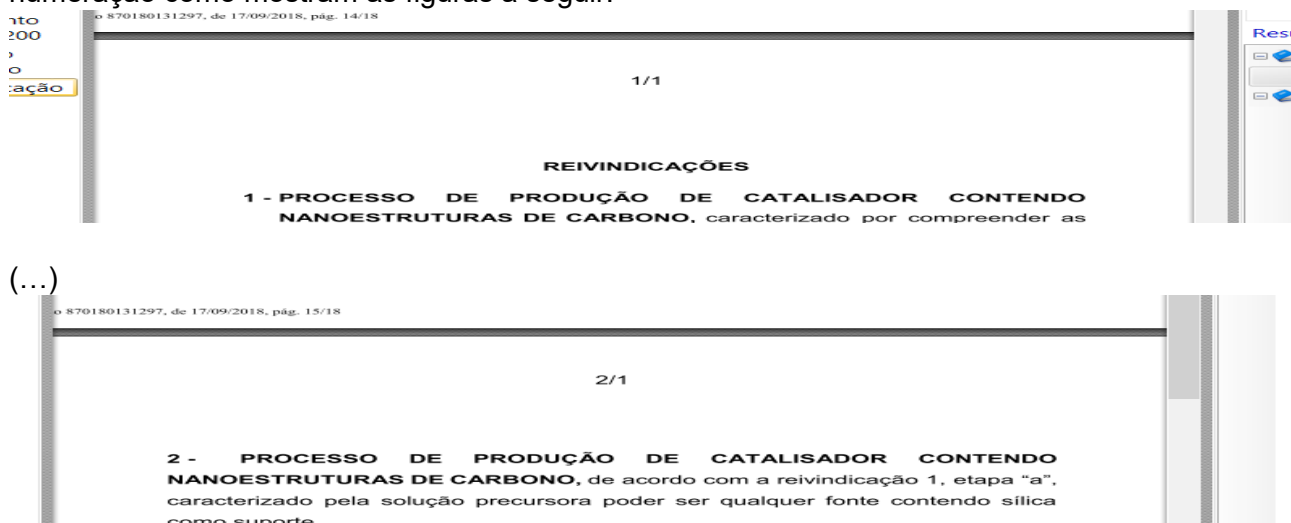
Comentários/Justificativas

O relatório descritivo é omissivo/silente em especificar quais matérias-primas são usadas fontes portadoras/contendo “sílica”, excetuando o “Tetraetil ortosilicato (TEOS)” mencionado ao longo do relatório descritivo e quadro reivindicatório. Assim, ao ler-se o texto da reivindicação 2, em que a *“solução precursora poder ser qualquer fonte contendo sílica como suporte”*, não seria possível assegurar que um técnico habilitado no assunto obtivesse, com uma expectativa razoável de êxito, o produto desejado através do processo pretendido e empregando matérias-primas diversas/diferentes de um TEOS. O produto ou processo ou uso alvos de um pedido de patente deve(m) estar suficientemente descrito(s) [suficiência descritiva – art. 24 da LPI] para permitir sua reprodução.

Em função dos problemas apontados no parágrafo anterior sobre a suficiência descritiva, em consequência interpreta-se que as reivindicações 1 e 2 não atendem ao disposto no Art. 25 da LPI e na Instrução Normativa nº 30/2013 – Art. 4º (IV), pois a matéria pleiteada restringe-se ao “Tetraetil ortosilicato (TEOS)” e não a *“qualquer fonte contendo sílica como suporte”*, essa sendo muito ampla e não está (completamente) fundamentada no relatório descritivo do pedido (contrariando o art. 24 da LPI). Ao longo do texto do presente pedido, não foram observadas a elaboração e/ou a concretização da matéria que pretende proteger com uma quantidade significativa de possibilidades. Não é evidente, para um técnico no assunto, que a abundância de classes de compostos (ou substituintes) possam ser equivalentes previsíveis. O objeto reivindicado em um pedido de patente deve estar suficientemente descrito nos seus documentos

para permitir sua reprodução por um técnico no assunto. Deste modo, os compostos que não foram suficientemente descritos, no depósito inicial ou na resposta da requerente ao primeiro exame, devem ser removidos, sendo então restringida a Reivindicação em questão, para que o privilégio sobre o presente pedido possa ser concedido, definindo de forma clara e precisa o objeto a que se destina a proteção, segundo o Artigo 25 da LPI.

As páginas 1 e 2 do Quadro Reivindicatório apresenta erro(s) de digitação na sua numeração como mostram as figuras a seguir:



O quadro reivindicatório contém duas páginas ao todo e essa realidade deveria estar registrada em sua numeração: 1/2 & 2/2. O Quadro Reivindicatório do presente pedido não descreve de forma clara e objetiva a invenção, contrariando o disposto no Art. 25 da LPI. Adicionalmente, no IN 31, Art. 39 está escrito que “As folhas relativas ao relatório descritivo, às reivindicações, aos desenhos e ao resumo deverão: I. ser numeradas consecutivamente, com algarismos arábicos, indicando o número da página e o número total de páginas (de cada uma destas partes), como p. ex. 1/N , 1 de N, 1-N, etc. [N=número total de páginas]”.

Na reivindicação 5 se define um produto por características relacionadas a um processo, ocasionando falta de clareza e precisão à matéria que se deseja proteger, descumprindo-se o disposto no Art. 25 da LPI e na Instrução Normativa nº 30/2013 – Art. 4º (III). Ressalta-se que um produto deve ser adequadamente definido por especificações referentes aos aspectos construtivos dos elementos que o constituem e não por características referentes aos processos ou etapas destes eventualmente conduzidos no referido aparato ou insumos utilizados no processo. A reivindicação 6 é interligada à reivindicação não privilegiável 5, e portanto, também é considerada não privilegiável.

Quadro 4 – Documentos citados no parecer		
Código	Documento	Data de publicação
D1	Minmin Liu; Ruizhong Zhang; Wei Chen. Graphene-Supported Nanoelectrocatalysts for Fuel Cells: Synthesis, Properties, and Applications, Chem. Rev. 2014, 114, 5117 – 516, 10.1021/cr400523y.	2014
D2	Lingzhi Wang; Jinlong Zhang; Feng Chen. Synthesis of hydrothermally stable MCM-48 mesoporous molecular sieve at	2009

	low cost of CTAB surfactant, Microporous and Mesoporous Materials 122 (2009) 229–233, 10.1016/j.micromeso.2009.03.004	
D3	Philippe Serp; Philippe Kalck; Roselyne Feurer. Chemical Vapor Deposition Methods for the Controlled Preparation of Supported Catalytic Materials, Chem. Rev. 2002, 102, 3085 – 3128, 10.1021/cr9903508.	2002
D4	Luisa E. Milagre; Tatiana A. Ribeiro-Santos; Ana Paula C. Teixeira; Maria Helena Araujo. Utilização de Materiais Carbonáceos, obtidos pelo processo CVD a partir da sílica MCM-41, para a adsorção de etinilestradiol, Sociedade Brasileira de Química (SBQ), 39a Reunião Anual da Sociedade Brasileira de Química: Criar e Empreender, Goiânia, 2016, http://www.s bq.org.br/39ra/cdrom/resumos/T0635-1.pdf .	2016
D5	US20050150819	14/07/2005

Quadro 5 – Análise dos Requisitos de Patenteabilidade (Arts. 8.º, 11, 13 e 15 da LPI)

Requisito de Patenteabilidade	Cumprimento	Reivindicações
Aplicação Industrial	Sim	1-6
	Não	-
Novidade	Sim	6
	Não	1-5
Atividade Inventiva	Sim	-
	Não	1-6

Comentários/Justificativas

O atual quadro reivindicatório apresenta as reivindicações independentes 1, 4 e 6 pleiteando proteção para matérias desprovidas de novidade e atividade inventiva. O mesmo raciocínio aplica-se às reivindicações dependentes.

Os documentos considerados os mais próximos da matéria reivindicada estão relacionados no quadro 4 deste parecer e sua matéria encontra-se discriminada nos parágrafos a seguir.

O documento do estado da técnica D1 é um *review* e como tal, apresenta uma compilação de conhecimentos de diversos autores. Quanto à preparação de grafeno dopado com N (denotado como N-grafeno) com o método CVD, NH₃ e outros compostos orgânicos foram usados como fontes de nitrogênio. Por exemplo, um método CVD para sintetizar filmes de N-grafeno em filmes de níquel [Na síntese, o filme de Ni foi primeiro depositado em um substrato SiO₂/Si. Após o filme de Ni ser aquecido a 1000°C sob atmosfera de argônio, uma mistura gasosa com a composição de NH₃ :CH₄ :H₂ :Ar = 10:50:65:200 foi introduzida, seguida de um fluxo de NH₃ e Ar por mais 5 min. Após tratamentos com solução aquosa de HCl, o filme de N-grafeno pode ser transferido para diferentes substratos]. O filme de N-grafeno sintetizado é flexível e transparente. Além do NH₃, os precursores líquidos de N, como acetoneitrila e piridina, também têm sido usados como fontes de nitrogênio para a síntese de N-grafeno.

Como mostrado na Figura 4, as folhas de sílica GO porosas tipo sanduíche foram primeiramente fabricadas por hidrólise de tetraetil ortossilicato com a presença de brometo de cetiltrimetil amônio. Os híbridos formados foram então recozidos em alta temperatura (500 – 1000°C) sob atmosfera de NH₃ ou H₂S. O N- ou S-grafeno pode ser finalmente obtido após a remoção do molde de sílica por corrosão. As medições de XPS mostraram que S e N foram dopados em folhas de grafeno com uma forma principal de S semelhante a tiofeno e três tipos de nitrogênio, incluindo piridínico-N, pirrólico-N e grafitico-N. Além disso, os níveis de dopagem de S e N estão na faixa de 1,2 – 1,7% e 2,4 – 2,6%, respectivamente.

A figura 4 mostra uma ilustração esquemática da síntese de grafeno dopado com N e S. (1,2) Hidrólise de ortossilicato de tetraetila (TEOS) na superfície GO com a presença de brometo de cetiltrimetil amônio (CTAB). (3-1) Recozimento térmico de folhas de sílica GO em amônia a 600, 800, 900 e 1000°C, respectivamente. (3-2) Recozimento térmico de folhas de GO-sílica em H₂S a 500, 700 e 900°C, respectivamente. (4-1 e 4-2) Remoção de sílica por solução de HF ou NaOH. As vantagens de baixo custo, capacidade de reciclagem e excelente atividade catalítica de nanomateriais à base de Fe dispersos em suportes de carbono os tornam bons eletrocatalisadores para o ORR em células de combustível. Os materiais FeN_x e FeC_x, incluindo macrociclos e quelatos suportados em materiais de carbono, exibiram excelentes atividades catalíticas para ORR em meio ácido. Os catalisadores à base de ferro podem ser obtidos a partir de precursores simples contendo N e metais. Desde a descoberta do grafeno em 2004, o grafeno monocamada ou multicamada ou seu óxido tem sido amplamente utilizado como suporte para catalisadores FeN_x.

Em outros itens, são abordados outros metais: 2.3.4. Nanocatalisadores/GNs baseados em co-base; 2.3.5. Nanocatalisadores/GNs baseados em Ni; 2.3.6. Outros Nanocatalisadores/GNs não nobres. No tópico 3.2.2. discutem-se as “Propriedades catalíticas do suporte de grafeno Nanoeletrocatalisadores”.

O documento do estado da técnica D2 é um *review* e como tal, apresenta uma compilação de conhecimentos de diversos autores. Informa que um(a) peneira molecular mesoporosa hidrotermalmente estável MCM-48 foi preparada com sucesso em condições extremamente baixo custo do brometo de cetiltrimetilamônio (CTAB), ajustando cuidadosamente as condições de síntese. O aumento da temperatura de cristalização de 373 K para 423 K pode reduzir drasticamente o CTAB quantidade de surfactante para a preparação de MCM-48 de 0,65 a 0,1 da relação CTAB/Si. Estudou-se o efeito de aumentar a temperatura de cristalização no processo de formação de MCM-48 a baixo custo CTAB. As influências da relação OH/Si e adição de flúor na estabilidade estrutural do MCM-48 material sintetizado em CTAB/Si = 0,1 e 423 K foram sistematicamente estudados por padrões XRD. Além disso, a combinação de aumento da temperatura de cristalização e adição de pequena quantidade de íons flúor pode melhorar consideravelmente a estabilidade da estrutura do MCM-48 ao reduzir o custo do CTAB.

O procedimento de síntese típico para MCM-48 foi o seguinte: 10 mL de ortossilicato de tetraetila (TEOS) e 56 mL de H₂O foram misturados e agitados por

cerca de 30 min e, em seguida, NaOH sólido foi adicionado diretamente à solução. Em seguida, NaF sólido em pó foi adicionado à mistura e agitado até o aparecimento de um gel de silicato branco. Subsequentemente, foi adicionado pó de brometo de cetiltrimetilamônio sólido (CTAB) sob agitação vigorosa. A mistura foi agitada durante 1 h à temperatura ambiente. Por fim, foi transferido para uma autoclave e cristalizado em várias temperaturas. A composição molar dos reagentes é a seguinte: $1\text{SiO}_2 : x\text{NaOH} : y\text{C-TAB} : 70\text{H}_2\text{O} : z\text{NaF}$, onde $x = 0,45\text{--}0,55$, $y = 0\text{--}0,65$ e $z = 0\text{--}0,4$. O produto sólido (amostra sintetizada) foi coletado por filtração, seco ao ar a 353 K e calcinado a 823 K por 6 h para remover o molde.

A quantidade de CTAB pode ser gradualmente reduzida aumentando a temperatura de cristalização. A Fig. 1 mostra a relação entre a razão CTAB/Si e a temperatura de cristalização para a síntese do MCM-48. O tempo de cristalização é fixado em 24h. A partir da Fig. 1 podemos descobrir que um MCM-48 bem ordenado pode ser formado em $\text{CTAB/Si} = 0,65$ e 373 K. Este resultado indica que a formação de MCM-48 geralmente necessita de alta concentração de CTAB. A relação CTAB/Si diminui para 0,3 quando a temperatura de cristalização aumenta de 373 K para 403 K, e diminui ainda mais para 0,1 quando a temperatura de cristalização aumenta para 423 K. Esses resultados indicam claramente que o aumento da temperatura de cristalização é realmente favorável para a formação de MCM-48 em baixo CTAB custo. A condensação e hidrólise dos silicatos é um processo catalisado por base. Quando a relação OH/Si é de 0,45, os graus de condensação dos silicatos da estrutura são comparativamente baixos, levando à baixa estabilidade da estrutura.

Este artigo mostra o resultado que o aumento da temperatura de cristalização pode efetivamente reduzir a quantidade de CTAB para a síntese de MCM-48 cúbico. Estudos sobre o processo de formação do MCM-48 T 423 K indicam que o melhor tempo de cristalização é de 24 h. Prolongar ainda mais o tempo de cristalização leva à formação da fase lamelar. No entanto, a amostra obtida não é forte o suficiente para suportar o tratamento de calcinação, e a estabilidade da estrutura não pode ser melhorada alterando a relação OH /Si. A adição de íons flúor é uma forma eficaz de melhorar a estabilidade da estrutura, e a quantidade de adição diminui com o aumento da relação OH/Si do sistema de síntese. A amostra obtida por ambos aumentando a temperatura de cristalização e adição de íons flúor tem maior estabilidade do que aquele sintetizado pela simples adição de íons flúor.

Apesar de não abordar diretamente as etapas de CVD e empregar, ao menos parcialmente, um sal de halogênio, aspectos importantes descritos nas atuais reivindicações 1 a 5 do presente pedido são antecipados ou revelados.

O documento do estado da técnica D3 aborda um(a) métodos de deposição química de vapor para a preparação controlada de materiais catalíticos suportados que as investigações sobre as reações entre complexos carbonílicos de metais de transição e superfícies sólidas para produzir complexos organometálicos de superfície e subsequentes. A 1ª parte abordada permite um bom conhecimento da primeira etapa do processo CVD. A segunda parte é dedicada aos catalisadores relatados na literatura que foram preparados pelo método de fase gasosa. Entre

os vários métodos denominados CVD na literatura, introduzimos uma classificação para fazer uma distinção clara entre os processos de uma etapa e os de duas ou mais geralmente várias etapas. Sempre que possível, relatamos a relação entre a estrutura e a atividade catalítica desses materiais e comparamos seu desempenho com o de catalisadores preparados por impregnação em fase líquida. Em uma terceira parte, levamos em consideração as modificações superficiais do suporte, seja para ajustar a morfologia, ou seja, o tamanho da abertura dos poros, seja para controlar suas propriedades ácido-base. Nesta parte da revisão, os depósitos não envolvem nanopartículas, mas podem ir desde submonocamadas, até filmes finos, incluindo overlayers.

O método CVD permite a produção de depósitos de forma controlada e em larga escala, poderia ser aplicado na preparação de catalisadores suportados. Essa visão unificada nos levou a revisar a literatura sob o ponto de vista dos processos físico-químicos que ocorrem na interface gás-sólido no decorrer da elaboração. Os suportes normalmente usados em catálise, ou seja, óxidos metálicos, carvões ativados ou zeólitas, são caracterizados por grandes áreas específicas e pela presença de sítios de ancoragem em sua superfície. Entre os óxidos metálicos mais estudados, encontramos a sílica, a alumina sob diferentes formas alotrópicas, a magnésia e a titânia. A área específica e a porosidade variam muito de um suporte para outro. De acordo com a IUPAC, três tipos de poros podem ser distinguidos para um determinado suporte de acordo com seu tamanho: microporos, menores que 2 nm; mesoporos, variando de 2 a 50 nm; e macroporos, maiores que 50 nm.

A sílica micro, meso e macroporosa pode ser preparada seletivamente. Assim, podem-se atingir áreas específicas muito altas, até 800 m² g⁻¹, mas é possível obter sílica com áreas específicas baixas. A maior parte deste sólido consiste em tetraedros de SiO₄ compartilhando seus átomos de oxigênio. Existem diversas formas de sílica amorfa e cristalizada, dentre elas o R-quartzo tem sido utilizado como suporte de modelo, sendo mais frequente o plano 0001. Pode-se citar que suportes não porosos esféricos e planos também podem ser utilizados, principalmente para estudos específicos. A superfície totalmente hidratada da sílica contém grupos hidroxila que terminam o volume com uma concentração variando de 4 a 6,5 OH nm⁻². Eles são isolados ou ligados a grupos OH vicinais por pontes de hidrogênio e constituem uma monocamada. Esta superfície hidrofílica é coberta por várias camadas de água fisicamente absorvida. Tal superfície, com valor de pK_a de 4 a 7, dependendo dos métodos de medição, mostra um comportamento levemente ácido. A água fisicamente adsorvida pode ser facilmente removida por aquecimento a 473 K, enquanto a eliminação do grupo silanol requer tratamentos térmicos mais elevados (Figura 1). Embora existam algumas discrepâncias entre os valores de temperatura publicados na literatura (presumivelmente devido à pressão na qual os experimentos foram realizados), a primeira etapa da desidroxilação leva a grupos hidroxila isolados e geminais. Acima de 1073 K, apenas grupos OH isolados ainda subsistem.

Um grande número de zeólitas pode ser sintetizado variando a relação SiO₂/Al₂O₃. No caso dos aluminossilicatos, a relação Si/Al governa a área superficial específica, o volume dos poros e as propriedades ácidas desses materiais. Como no caso das zeólitas, a troca catiônica

pode ser realizada para ajustar as propriedades ácido-base. Com relação aos três complexos de ferro, suas interações com os suportes foram examinadas, principalmente por espectroscopia de infravermelho. Demonstrou-se que a sílica parcialmente desidroxilada leva à fisissorção, de modo que, por exemplo, $[\text{Fe}(\text{CO})_5]$ pode ser facilmente removido do suporte, devido às interações fracas que existem entre o complexo de ferro e o silanol grupos. A irradiação fotoquímica deste $[\text{Fe}(\text{CO})_5]$ fisissorvido produz principalmente $[\text{Fe}_3(\text{CO})_{12}]$ presumivelmente através de uma espécie intermediária de $\text{Fe}(\text{CO})_4 - (\text{SiO}_2)$. Um estudo minucioso sobre a natureza das espécies formadas a 298 K pela reação de $[\text{Fe}(\text{CO})_5]$ e $[\text{Fe}_3(\text{CO})_{12}]$ com a superfície mostrou que, para alumina, magnésia e óxido de zinco a heterogeneizada $[\text{HFe}_3(\text{CO})_{11}]$ - espécie é obtida. De fato, um grupo hidroxila de superfície reage com a carbonila de ferro para fornecer ao complexo de hidreto a eliminação simultânea de um equivalente de CO_2 . Este complexo mostrou-se enxertado ao suporte através de uma ligação direta entre o grupo carbonila em ponte e um centro ácido da superfície (Al^{3+} , Mg^{2+} ...).

Mais uma vez, a presença de grupos OH na superfície determina a reatividade e, portanto, a natureza das espécies quimisorvidas: enquanto a magnésia totalmente hidroxilada e hidratada dá origem a $[\text{HFe}_3(\text{CO})_{11}]$ enxertado -, uma desidroxilação total da magnésia permite obter a ancoragem através de uma interação $[(\text{CO})_4\text{Fe}(\text{CO})_2]^{2-} - \text{Mg}^{2+}$ 95, conforme resumido na Figura 5. Estudos EXAFS realizados na quimissorção a 313 K de $[\text{Fe}_3(\text{CO})_{12}]$ em $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ ativado a 573 K em ar seco revelou a presença de $[\text{HFe}_3(\text{CO})_{10} - (\text{OAl})]$, onde o CO ponte de 1 foi substituído por um átomo de oxigênio diretamente ligado a um átomo de alumínio na superfície. O ferro metálico é obtido pela descarbonilação do $[\text{Fe}(\text{CO})_5]$ em torno de 350 K. Em suportes de grafite sintético, a decomposição de $[\text{Fe}(\text{CO})_5]$ produz ferro metálico a temperaturas tão baixas quanto 378 K. Da mesma forma, baixas temperaturas de descarbonilação (ca. 343 K) foram relatadas por Derouane e co-trabalhadores durante suas investigações de RMN em HY-zeólita, onde são produzidas partículas de ferro pirofórico altamente dispersas. 100 Estudos de infravermelho e termogravimétricos realizados na adsorção e decomposição de $[\text{Fe}(\text{CO})_5]$, 103 $[\text{Fe}_2(\text{CO})_9]$ e $[\text{Fe}_3(\text{CO})_{12}]$ mostraram que, ao contrário dos zeólitos contendo metais alcalinos, uma zeólita HY- promove a formação de espécies Fe_2 em ca. 550 K. Outros tópicos tratam de: Precursor de Cobalto; Precursor de Rênio; Precursores de metais diversos; Níquel, Ferro, Cobalto, Rutênio e Rênio; Outros precursores de metais não nobres.

Apesar de não abordar especificamente o uso de TEOS, aspectos importantes descritos nas atuais reivindicações 1 a 5 do presente pedido são antecipados ou revelados.

O documento do estado da técnica D4 tem por tema um(a) utilização de materiais carbonáceos, obtidos pelo processo CVD a partir da sílica MCM41. Os nanotubos de carbono têm sido muito utilizados como componentes de compósitos híbridos, os quais formam a parte hidrofóbica do material e a matriz, que é utilizada na síntese dos mesmos, atuam como a parte hidrofílica. Estes materiais podem ser produzidos por diferentes métodos, mas o processo CVD (chemical vapor deposition) está ganhando cada vez mais importância

e é considerado o método mais prático e econômico para a produção de nanotubos de carbono em larga escala. Neste trabalho, a MCM-41 foi utilizada como matriz inorgânica e o CTA + Br⁻, presente na matriz, como fonte de carbono para a produção de materiais carbonáceos via processo CVD. Em seguida, os materiais sintetizados foram testados na remoção do hormônio 17 α -etinilestradiol (EE). Para a síntese dos materiais, a MCM-41/CTAB foi impregnada com FeCl₃, para obter 10% de Fe como catalisador. Então o sólido foi tratado termicamente a 600°C em dois meios: apenas com fluxo de N₂ (MCM_N6) e com fluxo de N₂/etanol (MCM_E6). Os materiais obtidos foram caracterizados por análise térmica, espectroscopia Raman (Fig. 1a.), difração de raios X (Fig. 1b.) e microscopia eletrônica de varredura (Fig. 2.). Pela análise térmica, estimou o teor de carbono para as amostras MCM_N6 (11%) e MCM_E6 (16%). Além disso, os materiais obtidos podem ser utilizados como adsorventes de contaminantes.

O documento do estado da técnica D5 refere-se ao uso de catalisadores para a dessulfurização de correntes de hidrocarboneto.

Após a leitura do estado da técnica aqui apontado, entende-se que o documento D1 apresenta matéria suficiente para considerar-se que o conteúdo das reivindicações 1 a 5 do presente pedido já se encontram reveladas ou antecipadas no estado da técnica. Particularmente, o texto redigido para a reivindicação 4, cujas características usadas na definição da matéria pleiteada são genéricas, além de amplas e vagas, impossibilitando a definição clara, precisa e positiva da matéria objeto da proteção, o que contraria o disposto no Art. 25 da LPI e na Instrução Normativa nº 30/2013 – Art. 4º (III). Além disso, na forma em que a reivindicação está redigida (*ipsis litteris*), essa matéria pode ser encontrada nos documentos de anterioridade apontados no Quadro 4, a saber D1 a D4 (em anexo).

Após a leitura do estado da técnica aqui apontado, entende-se que a matéria pleiteada nas reivindicações 1,2,3,4,5 e 6 não atende ao requisito da atividade inventiva, pois decorre de maneira óbvia para um técnico no assunto a partir da combinação dos ensinamentos de documento D2 com os ensinamentos dos documentos D3 a D5, não sendo patenteável por infringir o disposto nos artigos 8º e 13 da Lei nº 9.279/96 (LPI).

Após a leitura do estado da técnica aqui apontado, alternativamente, entende-se que a matéria pleiteada nas reivindicações 1,2,3,4,5 e 6 não atende ao requisito da atividade inventiva, pois decorre de maneira óbvia para um técnico no assunto a partir da combinação dos ensinamentos de documento D2 com os ensinamentos dos documentos D3 e D5, não sendo patenteável por infringir o disposto nos artigos 8º e 13 da Lei nº 9.279/96 (LPI).

Após a leitura do estado da técnica aqui apontado, alternativamente, entende-se que a matéria pleiteada nas reivindicações 1,2,3,4,5 e 6 não atende ao requisito da atividade inventiva, pois decorre de maneira óbvia para um técnico no assunto a partir da combinação dos ensinamentos de documento D1 com os ensinamentos dos documentos D2 a D5, não sendo patenteável por infringir o disposto nos artigos 8º e 13 da Lei nº 9.279/96 (LPI).

Após a leitura do estado da técnica aqui apontado, alternativamente, entende-se que a matéria pleiteada nas reivindicações 1,2,3,4,5 e 6 não atende ao requisito da atividade inventiva, pois decorre de maneira óbvia para um técnico no assunto a partir da combinação dos ensinamentos de documento D4 com os ensinamentos dos documentos D1 a D5, não sendo patenteável por infringir o disposto nos artigos 8º e 13 da Lei nº 9.279/96 (LPI).

Conclusão

A matéria pleiteada nas reivindicações 1 a 5 carece de novidade, e não é patenteável por infringir o disposto nos artigos 8º e 11 da Lei nº 9.279/96 (LPI).

A matéria pleiteada nas reivindicações 1 a 6 carece de atividade inventiva, e não é patenteável por infringir o disposto nos artigos 8º e 13 da Lei nº 9.279/96 (LPI).

O depositante deve se manifestar quanto ao contido neste parecer em até 90 (noventa) dias, a partir da data de publicação na RPI, de acordo com o Art. 36 da LPI.

Publique-se a ciência de parecer (7.1).

Rio de Janeiro, 1º de maio de 2023.

Adailson da Silva Santos
Pesquisador/ Mat. Nº 2335762
DIRPA / CGPAT III/DIPEQ
Deleg. Comp. - Port. INPI/DIRPA Nº
002/11