



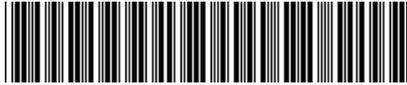
# 国家知识产权局

610000

成都市天府新区华阳华府大道1段1号蓝润ISC2栋1单元2008号 成都天汇致远知识产权代理事务所(普通合伙)  
韩晓银(028-85961062)

发文日:

2024年01月04日



申请号: 202111355034.9

发文序号: 2024010400347040

申请人: 西南石油大学

发明创造名称: 一种基于光催化反应的压裂返排液净化实验方法

## 驳 回 决 定

1. 根据专利法第38条及其实施细则第53条的规定, 决定驳回上述专利申请, 驳回的依据是:

- 申请不符合专利法第2条第2款的规定。  
 申请属于专利法第5条或者第25条规定的不授予专利权的范围。  
 申请不符合专利法第9条第1款的规定。  
 申请不符合专利法第19条第1款的规定。  
 申请不符合专利法第22条的规定。  
 申请不符合专利法第26条第3款或者第4款的规定。  
 申请不符合专利法第26条第5款或者实施细则第26条的规定。  
 申请不符合专利法第31条第1款的规定。  
 申请的修改不符合专利法第33条的规定。  
 申请不符合专利法实施细则第20条第2款的规定。  
 分案申请不符合专利法实施细则第43条第1款的规定。  
 \_\_\_\_\_

详细的驳回理由见驳回决定正文部分(共3页)。

2. 本驳回决定是针对下列申请文件作出的:

- 原始申请文件。  分案申请递交日提交的文件。  下列申请文件:

申请日提交的摘要附图、说明书摘要、说明书第1-56段、说明书附图; 2023年12月13日提交的权利要求第1项。

3. 根据专利法第41条及实施细则第60条的规定, 申请人对本驳回决定不服的, 可以在收到本决定之日起3个月内向专利局复审和无效审理部请求复审。根据专利法实施细则第96条的规定, 复审费应在上述期限内缴纳, 期满未缴纳或者未缴足的, 视为未提出请求。

审查员: 余海英  
联系电话: 028-62968406

审查部门: 专利审查协作四川中心



210407  
2022.10

纸件申请, 回函请寄: 100088 北京市海淀区蓟门桥西土城路6号 国家知识产权局专利局受理处收  
电子申请, 应当通过电子专利申请系统以电子文件形式提交相关文件。除另有规定外, 以纸件等其他形式提交的文件视为未提交。



## 驳回决定

申请号：2021113550349

本决定涉及的是申请号为 2021113550349 的名称为“一种基于光催化反应的压裂返排液净化实验方法”的发明专利申请（下称“本申请”），申请人为西南石油大学，申请日为 2021 年 11 月 16 日。

### 一、案由

本申请原申请文件权利要求书包括 1 项独立权利要求 1 以及 8 项从属权利要求 2-9。

应申请人于 2021 年 11 月 16 日提出的实质审查请求，审查员对本申请进行了实质审查，并于 2023 年 05 月 11 日发出了第一次审查意见通知书，指出权利要求 1-9 不具备专利法第 22 条第 3 款规定的创造性。通知书中引用了如下对比文件：

对比文件 1：“油田压裂返排液的絮凝沉淀及高级氧化处理研究”，雷菁花，《中国优秀硕士学位论文全文数据库 工程科技 I 辑》，第 B019-90 页，公开日为 2019 年 12 月 15 日；

对比文件 2：CN111177915A，公开日为 2020 年 05 月 19 日；

对比文件 3：“Role of hexamethylenetetramine concentration on structural, morphological, optical and electrical properties of hydrothermally grown zinc oxide nanorods”，Guru Nisha Narayanan et al.，《J Mater Sci: Mater Electron》，第 27 卷，第 12209-12215 页，公开日为 2016 年 07 月 21 日；

对比文件 4：“BiOBr<sub>x</sub>I<sub>1-x</sub>/BiOBr heterostructure engineering for efficient molecular oxygen activation”，Yang Bai et al.，《Chemical Engineering Journal》，第 356 卷，第 34-42 页，公开日为 2018 年 09 月 03 日；

对比文件 5：CN104724860A，公开日为 2015 年 06 月 24 日。

申请人于 2023 年 09 月 25 日针对第一次审查意见通知书提交了意见陈述书，并对权利要求进行了修改，将权利要求 2-4 并入权利要求 1 中，对其余权利要求作出适应性调整。意见陈述了修改后的权利要求书具备创造性的理由。

审查员继续审查，并于 2023 年 09 月 29 日发出第二次审查意见通知书，指出权利要求 1-6 不具备专利法第 22 条第 3 款规定的创造性。通知书没有引用新的对比文件。

针对上述审查意见通知书，申请人于 2023 年 12 月 13 日递交了意见陈述书，对权利要求进行了修改，将权利要求 2-6 并入权利要求 1 中。意见陈述要点与前次相同。

审查员认为，本案事实已经清楚，因此针对申请日提交的摘要附图、说明书摘要、说明书第 1-56 段、说明书附图；2023 年 12 月 13 日提交的权利要求第 1 项作出本驳回决定。

### 二、驳回理由

（一）权利要求 1 不具备专利法第 22 条第 3 款规定的创造性。

1. 权利要求 1 请求保护一种基于光催化反应的压裂返排液净化实验方法，对比文件 1（“油田压裂返排液的絮凝沉淀及高级氧化处理研究”，雷菁花，《中国优秀硕士学位论文全文数据库 工程科技 I 辑》，第 B019-90 页，20191215）公开了一种油田压裂返排液的处理方法，具体公开了（参见第 8 页第 1.4.1 节）：通过分析长庆油田第五采油厂（定边）油田压裂返排液，得到相应的污染物含量。首先采用絮凝沉淀法对废水进行预处理，主要去除悬浮物和不溶性有机物；其次对预处理之后的废水进行深度处理，主要去除可溶性有机物，包括 Fenton 氧化处理和光催化处理，并且对每步工艺操作参数进行优化，使得最终的出水水质满足石化行业污染物排放标准。

由此可见，对比文件 1 公开了对压裂返排液依次进行絮凝处理、氧化处理以及光催化处理，并计算了光催化效率，由此得到净化后的液体。该权利要求请求保护的技术方案与对比文件 1 的区别技术特征在于：

（1）还限定了用分子模拟软件多维度确定改性光催化剂的分子空间结构与化学反应过程，并评估改性光催化剂物理化学性能；（2）还限定了纳米锌改性光催化剂和卤化氧改性光催化剂；（3）还限定了对压裂返排液进行预处理、除油处理，以及处理压裂反排液的具体工艺。基于上述区别技术特征，其实际解决的技术问题在于：如何提高光催化反应性能。

对于区别技术特征（1），对比文件 2（CN111177915A，20200519）公开了一种催化材料高通量计算方法和系统，具体公开了（参见说明书第 5-6、46-47 段）：

根据基于机器学习算法构建的催化剂构效关系模型，初步筛选满足目标催化性能的待确认催化材料；基



于催化剂构效关系模型对待确认催化材料进行预测的催化性能预测结果与待确认催化材料的计算结果的偏差，在预定偏差范围内的情况下，确定待确认催化材料为达到目标催化性能的催化材料。

本申请所述技术方案提供采用催化剂高通量计算的方法对催化材料进行筛选，能够有效提高催化材料的筛选精度和筛选速度；本申请所述技术方案能够根据高通量计算数据，更新调整构效关系模型。本申请所述技术方案易于实现，操作简单，可自动化、智能化地完成催化材料的精确筛选。

由此可见，对比文件 2 公开了通过多维度来构建催化剂构效关系，即催化剂的分子结构和反应效率之间的关系，实现催化剂性能预测，从而达到筛选目标催化剂的效果。对比文件 2 还指出通过模拟计算的方法对催化剂进行筛选能够提高催化剂的筛选精度和速度，本领域技术人员在对比文件 2 的技术启示下，为了进一步提高反应效率，容易想到采用模拟计算的多维度的方法来筛选光催化剂。对比文件 2 公开了“采用分子模拟程序或全局优化算法获取颗粒模型的平衡结构。基于化学反应的反应路径网络，在表面模型上计算模拟其反应过程（参见说明书第 56-57 段）”。即公开了采用分子模拟软件模拟催化剂分子结构和反应过程。

对于区别技术特征（2），对于纳米锌改性光催化剂，对比文件 1 公开了光催化剂可以是纳米氧化锌改性的光催化剂，此外现有技术中如对比文件 3（“Role of hexamethylenetetramine concentration on structural, morphological, optical and electrical properties of hydrothermally grown zinc oxide nanorods”，Guru Nisha Narayanan et al., 《J Mater Sci: Mater Electron》，第 27 卷，第 12209-12215 页，20160721）公开了一种六亚甲基四胺浓度对水热法制备氧化锌纳米棒结构、形态、光电性能的影响的研究，具体公开了（参见第 12210 页第 2.2 节）：“氧化锌纳米棒是通过浸渍 ZnO 晶种制备得到的，氧化锌晶种是通过简单的溶胶凝胶法制备得到。将涂覆在玻璃衬底上的 ZnO 晶种层浸没在含水生长溶液中（包含不同浓度的 HMTA(0.1 至 0.5M)在 50 毫升蒸馏水中），在高压釜中在 90℃下保持 3 小时。将纳米棒样品用蒸馏水充分洗涤。然后在 550℃下在空气中退火 1 小时。”由此可见，对比文件 3 公开了采用六亚甲基四胺改性的氧化锌纳米棒，其图 2 表明可以通过调整六亚甲基四胺的浓度来调控氧化锌的形貌，从而得到六方体的氧化锌材料。对比文件 1 公开了氧化锌是本领域常用于光催化降解压裂返排液的催化剂，本领域技术人员可以结合对比文件 2 中的计算模拟方案，按需选择对比文件 3 中的改性氧化锌。此外，光催化剂的光敏化处理是本领域的常规改性手段，光敏化后能够进一步提高光催化性能是本领域技术人员可以合理预期的。

卤化氧改性光催化剂同样是本领域常用于处理压裂返排液的光催化剂，本领域技术人员可以按需选择。具体地，对比文件 4（“BiOBr<sub>x</sub>I<sub>1-x</sub>/BiOBr heterostructure engineering for efficient molecular oxygen activation”，Yang Bai et al., 《Chemical Engineering Journal》，第 356 卷，第 34-42 页，20180903）公开了一种用于分子氧化的 BiOBr<sub>x</sub>I<sub>1-x</sub>/BiOBr 催化剂，具体公开了（参见第 34 页摘要部分，第 36 页第 2.2 节）：

对于光催化性能，BiOBr<sub>x</sub>I<sub>1-x</sub>/BiOBr 可以有效降解有机污染物和用于处理油田生产废水。通过表征研究了光催化性能提升的原因。

与先前报道的 BiOBr<sub>x</sub>I<sub>1-x</sub> 的合成方法不同，我们在合成过程中分别添加了 I 和 Br 源。KBr 和 KI 的用量按 Br:I 摩尔比为 2:0, 1.5:0.5 和 0:2 (KBr 和 KI 的总量为 1mmol) 计算。将 Bi(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>·5H<sub>2</sub>O 和一定量的 KBr 溶解在 20mL 的 H<sub>2</sub>O 中，搅拌 30 分钟。溶解后将 20ml 含有一定浓度 KI 的乙二醇 (EG) 溶液滴加到上述混合溶液中。连续搅拌 2 小时直到形成沉淀，然后用去离子水洗涤，并在 80℃ 下干燥 10 小时。

由此可见，对比文件 4 公开了与本申请相同的分步添加碘源和溴源制备卤化氧改性光催化剂的制备方法，并指出这一光催化剂能够用于降解油田废水的污染物，本领域技术人员可以结合模拟计算结构选择上述催化剂并将其用于光催化降解压裂返排液，由此带来的效果是本领域技术人员可以合理预期的。对于催化剂的制备细节，乙二醇和水均是本领域常用的溶剂，本领域技术人员可以按需选择并添加，并通过有限的试验调整碘化钾和溴化钾的添加顺序。干燥条件是本领域技术人员可以常规调整得到的。

对于区别技术特征（3），本领域熟知，压裂返排液中含有大量的杂质，其中包括固体颗粒、悬浮物、石油类以及有机污染物等。在进行预处理时，本领域技术人员容易想到对压裂返排液进行过滤等预处理操作、以及氧化、絮凝和除油处理，上述步骤的顺序可以常规调整得到。对于压裂返排液的具体处理细节，对比文件 5（CN104724860A，20150624）公开了一种压裂返排液处理方法，具体公开了（参见说明书第 18-23 段）：“1) 预处理：脱除返排液中的游离气，过滤颗粒杂质，然后将返排液的 pH 调至 7，向返排液中加入絮凝剂 PAC：2000mg/L 和 PAM：100mg/L 进行絮凝，并加入 50mg/L 的破乳剂，絮凝沉淀；2) 氧化处理：将返



排水预处理后的出水 pH 调整为 4，并且在预处理后的出水中加入氧化剂，该氧化剂与预处理后的出水的质量比为 1:100，该氧化剂可采用高锰酸钾、Fenton 试剂或亚氯酸钠，氧化反应 50min；3) 絮凝：将氧化处理的出水 pH 值调整为 7，加入絮凝剂 PAC: 2000mg/L 和 PAM: 100mg/L 进行絮凝后过滤，去除出水中的絮状悬浮物；4) 一次催化氧化处理：以稀有贵金属铱作为催化剂，该催化剂与絮凝出水的体积比为 1:2，向絮凝出水中加入氧化剂，该氧化剂为臭氧，该臭氧与絮凝出水的质量比为 1:100，再向絮凝出水中曝气，曝气量为 30KPa，进行催化氧化反应，反应 50min 后，使用 50-20 微米的滤芯进行两级粗过滤；5) 二次催化氧化处理：粗过滤出水后，以稀有贵金属铱作为催化剂，臭氧作为氧化剂，按照步骤 4) 中的方法进行二次催化氧化反应，反应 50min 后，使用 10-5 微米的滤芯进行两级精过滤。将最终两级精过滤的出水进行检测，检测出水中 COD、悬浮物、石油类等物质的含量。”原油是压裂返排液中常见的杂质，采用鼓气除去是本领域的常规手段，本领域技术人员可以按需选择。

因此，在对比文件 1 的基础上结合对比文件 2-5 和本领域常规技术手段得该权利要求所要求保护的技术方案，对本领域技术人员来说是显而易见的，因此，该权利要求不具有突出的实质性特点和显著的进步，不具有专利法第 22 条第 3 款规定的创造性。

## (二) 针对申请人意见陈述的答复。

申请人在意见陈述中陈述了本申请具有创造性的理由：

本申请实际解决的技术问题是如何利用好光催化反应原理、怎样优选出适用于压裂返排净化处理的合格光催化剂及配套工艺。对比文件 2 是根据高通量计算数据，更新调整构效关系模型。本申请通过调控制备方法和反应参数，合成出适用于水力压裂过程的改性光催化剂，评价改性光催化剂性能，将之用于处理压裂返排液中残余有机成分，并研究不同类型改性光催化剂净化处理有机物的效率和对油气田增产改造的影响，最终优选出我们所需的改性光催化剂，形成一整套有利于油气田增产改造的光催化剂压裂返排处理工艺。可见，对比文件 2 与本申请公开的内容不同，解决的技术问题不同，实际达到的技术效果也不同。

对此，审查员答复如下意见：

对比文件 1 公开了一整套油田压裂返排液的处理工艺，包括对压裂返排液依次进行絮凝处理、氧化处理以及光催化处理，并计算了光催化效率，由此得到净化后的液体。对于光催化剂的选择，对比文件 1 公开了光催化剂可以是纳米氧化锌改性的光催化剂，卤化氧改性光催化剂同样是本领域常用于处理压裂返排液的光催化剂，对比文件 3 和对比文件 4 同样公开了上述催化剂，本领域技术人员均可以按需选择。对于光催化剂的优化，对比文件 2 公开了通过多维度来构建催化剂构效关系，即催化剂的分子结构和反应效率之间的关系，实现催化剂性能预测，从而达到筛选目标催化剂的效果。对比文件 2 还指出通过模拟计算的方法对催化剂进行筛选能够提高催化剂的筛选精度和速度，本领域技术人员在对比文件 2 的技术启示下，为了进一步提高反应效率，容易想到采用模拟计算的多维度的方法来筛选光催化剂。当将其应用到处理压裂返排液的光催化剂中时，本领域技术人员容易想到基于光催化剂的分子结构、晶体结构等性质关联相应的光催化反应性能，由此筛选优化出性能更优的光催化剂，从而实现本申请所述的技术效果。

综上，申请人的意见陈述没有说服力。

## 三、决定

综上所述，本发明专利申请权利要求第 1 项不符合专利法第二十二条第三款的规定，属于专利法实施细则第五十三条第二项的情况，因此根据专利法第三十八条予以驳回。

根据专利法第四十一条第一款的规定，申请人如果对本驳回决定不服，可以在收到本驳回决定之日起三个月内，向专利局复审和无效审理部请求复审。

审查员姓名:余海英  
审查员代码:30141435