(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2015-0005613
(43) 공개일자 2015년01월14일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
A01N 59/16 (2006.01) *A01N 25/08* (2006.01)
A01N 25/10 (2006.01) *A01N 25/22* (2006.01)
A01P 1/00 (2006.01) *C09D 5/14* (2006.01)
(21) 출원번호 10-2014-7031747
(22) 출원일자(국제) 2013년04월15일
심사청구일자 없음
(85) 번역문제출일자 2014년11월12일
(86) 국제출원번호 PCT/US2013/036672
(87) 국제공개번호 WO 2013/158575
국제공개일자 2013년10월24일
(30) 우선권주장
13/448,253 2012년04월16일 미국(US)
13/841,741 2013년03월15일 미국(US)

(71) 출원인
번지 아모르픽 솔루션즈 엘엘씨
미합중국 뉴욕 (우편번호 10606) 화이트 플레인즈 메인 스트리트 50
(72) 발명자
포스칸테, 레이몬드, 이.
미국 92886 캘리포니아주 요바 린다 맨저니터 애비뉴 20547
(74) 대리인
양영준, 김영

전체 청구항 수 : 총 140 항

(54) 발명의 명칭 **항미생물성 화학 조성물**

(57) 요 약

항미생물성 화학 조성물은 결합 중합체 내에 분산된 알루미늄 포스페이트 (AlP) 고체를 포함하고, 여기서 1종 이상의 생물활성 물질이 AlP 내에 배치되어 생물활성물-AlP 착물을 형성한다. 착물은 AlP와 화학적으로 결합되거나, AlP와 물리적으로 조합된 생물활성 물질, 또는 이들 둘의 조합을 포함할 수 있다. 착물은 침전, 축합 및 졸-겔 형성 방법에 따라 형성될 수 있다. 착물은 수분에 노출시 약 30 $\mu g/m^2$ 이상의 생물활성 물질 또는 그의 구성성분의 조절 전달을 제공하도록 가공되어 조성물로부터 형성된 필름 또는 복합재에 목적하는 수준의 항미생물성 저항성을 제공하고, 또한 부동태화 포스페이트 음이온의 방출을 통해 목적하는 수준의 내식성을 제공할 수 있다. 이러한 항미생물성 화학 조성물은 공지된 항미생물성 화학 조성물과 비교하여, 광범위한 미생물에 대하여 향상된 수준의 장기 활성 저항성을 제공한다.

특허청구의 범위

청구항 1

생물활성 구성성분을 포함하고, 수분과의 접촉시 일정 속도로 생물활성 구성성분을 방출하는 착물; 및

착물이 벌크 매트릭스 내에 배치되고, 벌크 매트릭스는 착물로부터 방출된 생물활성 구성성분이 일정 속도로 벌크 매트릭스를 통해 확산되도록 하는 것인, 항미생물성 화학 조성물의 벌크 매트릭스를 형성하는 결합제 중합체

를 포함하고; 여기서, 착물로부터의 생물활성 구성성분의 방출 속도는 생물활성 구성성분의 벌크 매트릭스를 통한 확산 속도와 동일하거나 상이한 것인 항미생물성 화학 조성물.

청구항 2

제1항에 있어서, 착물이 알루미늄 포스페이트를 포함하는 것인 화학 조성물.

청구항 3

제2항에 있어서, 알루미늄 포스페이트가 무정형 알루미늄 포스페이트인 화학 조성물.

청구항 4

제2항에 있어서, 알루미늄 포스페이트가 결정질 알루미늄 포스페이트인 화학 조성물.

청구항 5

제2항에 있어서, 알루미늄 포스페이트가 무정형 및 결정질 알루미늄 포스페이트의 조합인 화학 조성물.

청구항 6

제1항에 있어서, 생물활성 구성성분의 방출 속도가 생물활성 구성성분의 확산 속도와 상이한 것인 화학 조성물.

청구항 7

제6항에 있어서, 생물활성 구성성분의 방출 속도가 생물활성 구성성분의 확산 속도보다 빠른 것인 화학 조성물.

청구항 8

제6항에 있어서, 생물활성 구성성분의 방출 속도가 생물활성 구성성분의 확산 속도보다 느린 것인 화학 조성물.

청구항 9

제1항에 있어서, 착물이 무정형 알루미늄 포스페이트를 포함하고 다공도를 가지며, 생물활성 구성성분의 방출 속도가 다공도의 함수인 화학 조성물.

청구항 10

제1항에 있어서, 생물활성 구성성분이 착물화된 은 물질을 포함하는 생물활성 물질에 존재하는 것인 화학 조성물.

청구항 11

제10항에 있어서, 착물화된 은 물질이 리간드로 이루어진 군으로부터 선택된 착물화제를 포함하는 것인 화학 조성물.

청구항 12

제11항에 있어서, 리간드가 이미다졸, 치환된 이미다졸, 암모니아, 및 이들의 조합으로 이루어진 군으로부터 선택된 것인 화학 조성물.

청구항 13

제12항에 있어서, 은 물질이 은 염을 포함하고, 리간드가 이미다졸인 화학 조성물.

청구항 14

제10항에 있어서, 생물활성 물질이 금속 산화물을 추가로 포함하는 것인 화학 조성물.

청구항 15

제14항에 있어서, 금속 산화물이 구리, 아연, 및 이들의 조합으로 이루어진 금속을 포함하는 산화물의 군으로부터 선택된 것인 화학 조성물.

청구항 16

결합 중합체; 및

알루미늄 포스페이트 중합체 및 생물활성 물질을 포함하며, 결합 중합체 내에 분산된 생물활성물-알루미늄 포스페이트 착물

을 포함하고; 여기서, 알루미늄 포스페이트 착물은 항미생물성 화학 조성물이 경화되었을 때, 수분에 노출시 생물활성 물질로부터 유래된 생물활성 구성성분의 조절 전달을 제공하는 가공된 다공도를 갖는 것인 항미생물성 화학 조성물.

청구항 17

제16항에 있어서, 알루미늄 포스페이트 중합체가 무정형 알루미늄 포스페이트인 화학 조성물.

청구항 18

제16항에 있어서, 알루미늄 포스페이트 중합체가 결정질 알루미늄 포스페이트인 화학 조성물.

청구항 19

제16항에 있어서, 알루미늄 포스페이트 중합체가 무정형 및 결정질 알루미늄 포스페이트의 조합인 화학 조성물.

청구항 20

제16항에 있어서, 생물활성 구성성분의 조절 전달이 약 15 내지 800 ppm의 범위인 화학 조성물.

청구항 21

제16항에 있어서, 생물활성 구성성분의 조절 전달이 약 30 $\mu g/m^2$ 이상인 화학 조성물.

청구항 22

제16항에 있어서, 착물에 존재하는 생물활성 물질의 양이 착물의 총 중량의 1 내지 10%의 범위인 화학 조성물.

청구항 23

제16항에 있어서, 포스페이트 대 알루미늄의 비율이 약 0.5:1 내지 1.5:1의 범위인 화학 조성물.

청구항 24

제16항에 있어서, 생물활성 물질이 알루미늄 포스페이트 중합체에 물리적으로 산재된 것인 화학 조성물.

청구항 25

제16항에 있어서, 생물활성 물질이 은, 칼슘, 구리, 아연의 금속 이온, 은 염, 구리 염, 아연 염, 칼슘 염, 및 이들의 조합으로 이루어진 군으로부터 선택된 금속 염인 화학 조성물.

청구항 26

제16항에 있어서, 생물활성 물질이 은 이온, 은 염, 및 물과 접촉하였을 때 은 이온을 방출할 수 있는 은 화합물, 및 이들의 조합으로 이루어진 군으로부터 선택된 것인 화학 조성물.

청구항 27

제16항에 있어서, 생물활성 물질이 알루미늄 포스페이트 중합체와 화학적으로 결합된 것인 화학 조성물.

청구항 28

제27항에 있어서, 생물활성 물질이 알루미늄 포스페이트 중합체의 백본(backbone)에 혼입된 것인 화학 조성물.

청구항 29

제16항에 있어서, 생물활성 물질이 알루미늄 포스페이트 중합체와 물리적으로 조합된 금속 염인 화학 조성물.

청구항 30

제16항에 있어서, 착물이 약 100 m^2/g 초과의 표면적을 갖는 것인 화학 조성물.

청구항 31

제16항에 있어서, 착물이 약 100 m^2/g 미만의 표면적을 갖는 것인 화학 조성물.

청구항 32

제16항에 있어서, 착물이 약 20 m^2/g 미만의 표면적을 갖는 것인 화학 조성물.

청구항 33

제16항에 있어서, 생물활성 구성성분의 조절 전달이 생물활성 구성성분의 결합제 중합체를 통한 확산 속도와 상이한 것인 화학 조성물.

청구항 34

제16항에 있어서, 화학 조성물의 총 중량을 기준으로, 약 0.01 내지 1 중량% 범위의 생물활성 물질을 포함하는 화학 조성물.

청구항 35

제16항에 있어서, 화학 조성물의 총 중량을 기준으로, 약 0.05 내지 5 중량% 범위의 착물을 포함하는 화학 조성물.

청구항 36

제16항에 있어서, 화학 조성물의 총 중량을 기준으로, 약 0.1 내지 2 중량% 범위의 착물을 포함하는 화학 조성물.

청구항 37

제16항에 있어서, 결합 중합체가 폴리우레탄, 폴리에스테르, 용매계 에폭시, 무용매 에폭시, 수계 에폭시, 에폭시 공중합체, 아크릴, 아크릴 공중합체, 실리콘, 실리콘 공중합체, 폴리실록산, 폴리실록산 공중합체, 알키드 및 이들의 조합으로 이루어진 군으로부터 선택된 것인 화학 조성물.

청구항 38

제16항에 있어서, 생물활성물-알루미늄 포스페이트 착물이 물 약 25 중량% 이하의 물 흡착능을 갖는 것인 화학 조성물.

청구항 39

제16항에 있어서, 생물활성물-알루미늄 포스페이트 착물이 수분에 노출시 약 1,500 ppm 미만의 포스페이트 음이온의 조절 전달을 갖는 것인 화학 조성물.

청구항 40

제39항에 있어서, 포스페이트 음이온의 조절 전달이 약 100 내지 500 ppm인 화학 조성물.

청구항 41

제16항에 있어서, 생물활성 물질이 금속 염을 포함하고, 금속 염은 리간드, 금속 산화물, 및 이들의 조합으로 이루어진 군으로부터 선택된 물질과 조합된 것인 화학 조성물.

청구항 42

제41항에 있어서, 금속 염이 질산은이고, 리간드가 암모니아, 이미다졸, 치환된 이미다졸, 및 이들의 조합으로 이루어진 군으로부터 선택된 것인 화학 조성물.

청구항 43

제12항에 있어서, 금속 염이 금속 산화물과 조합된 것인 화학 조성물.

청구항 44

제16항의 화학 조성물로부터 형성된 프라이머(primer) 코팅물.

청구항 45

제16항의 화학 조성물로부터 형성된 코팅 시스템의 미드-코트(mid-coat) 또는 탑-코트(top-coat).

청구항 46

결합 중합체를 결합 중합체에 분산된 생물활성물-알루미늄 포스페이트 착물과 함께 포함하는, 기판에 적용되고 경화되어 필름을 형성하는 코팅 조성물을 포함하고, 여기서 착물은 생물활성 물질과 조합된 알루미늄 포스페이트를 포함하고, 수분에 노출시 생물활성 구성성분의 조절 전달을 제공하도록 가공된 것인, 항미생물성 보호를 제공하는 시스템.

청구항 47

제46항에 있어서, 생물활성 물질이 리간드, 금속 산화물, 및 이들의 조합으로 이루어진 군으로부터 선택된 추가 물질과 조합된 것인 시스템.

청구항 48

제47항에 있어서, 생물활성 물질이 질산은이고, 암모니아, 이미다졸, 치환된 이미다졸, 및 이들의 조합으로 이루어진 군으로부터 선택된 리간드와 착물화된 것인 시스템.

청구항 49

제48항에 있어서, 생물활성 물질이 금속 산화물과 조합된 것인 시스템.

청구항 50

제49항에 있어서, 금속 산화물이 구리, 아연, 및 이들의 조합으로 이루어진 금속의 산화물을 포함하는 군으로부터 선택된 것인 시스템.

청구항 51

제46항에 있어서, 착물로부터의 조절 전달이 일정 방출 속도로 발생하고, 결합 중합체가 착물로부터 방출된 생물활성 구성성분에 대하여 일정 확산 속도를 가지며, 방출 속도가 확산 속도와 상이한 것인 시스템.

청구항 52

제46항에 있어서, 착물이 약 100 m^2/g 초과의 표면적을 갖는 것인 시스템.

청구항 53

제46항에 있어서, 착물이 약 20 m^2/g 미만의 표면적을 갖는 것인 시스템.

청구항 54

제46항에 있어서, 생물활성 구성성분의 조절 전달이 약 5 내지 1,000 ppm의 범위인 시스템.

청구항 55

제54항에 있어서, 생물활성 구성성분의 조절 전달이 약 10 내지 900 ppm의 범위인 시스템.

청구항 56

제54항에 있어서, 생물활성 구성성분의 조절 전달이 약 15 내지 800 ppm의 범위인 시스템.

청구항 57

제46항에 있어서, 생물활성 구성성분의 조절 전달이 약 30 $\mu g/m^2$ 이상인 시스템.

청구항 58

제46항에 있어서, 생물활성 물질이 은, 구리, 아연, 및 이들의 조합으로 이루어진 군으로부터 선택된 금속 이온이고, 금속 이온이 알루미늄 포스페이트의 백본에 혼입된 것인 시스템.

청구항 59

제58항에 있어서, 금속 이온이 알루미늄 포스페이트 착물에 화학적으로 결합된 것인 시스템.

청구항 60

제46항에 있어서, 생물활성 물질이 은, 구리, 아연, 칼슘, 및 이들의 조합으로 이루어진 군으로부터 선택된 금속 염이고, 알루미늄 포스페이트에 물리적으로 혼입된 것인 시스템.

청구항 61

제60항에 있어서, 생물활성 물질이 은, 구리, 아연, 칼슘, 및 이들의 조합으로 이루어진 군으로부터 선택된 금속 이온이고, 알루미늄 포스페이트의 백본에 혼입된 것인 시스템.

청구항 62

제46항에 있어서, 수분에 노출시 약 100 내지 1,500 ppm의 포스페이트 음이온의 조절 방출 속도를 포함하는 시스템.

청구항 63

제46항에 있어서, 결합 중합체가 폴리우레탄, 폴리에스테르, 용매계 에폭시, 무용매 에폭시, 수계 에폭시, 에폭시 공중합체, 아크릴, 아크릴 공중합체, 실리콘, 실리콘 공중합체, 폴리실록산, 폴리실록산 공중합체, 알키드 및 이들의 조합으로 이루어진 군으로부터 선택된 것인 시스템.

청구항 64

알루미늄 공급원을 적합한 pH의 수용액에서 포스페이트 공급원과 조합하여 알루미늄 포스페이트의 분산물을 형성함으로써 무정형 알루미늄 포스페이트를 형성하는 단계; 및

형성 단계 동안에 또는 후에 생물활성 물질을 첨가하여, 생물활성 물질이 알루미늄 포스페이트와 조합되어 생물활성물-알루미늄 포스페이트 착물을 형성하도록 하는 단계

를 포함하는, 생물활성물-알루미늄 포스페이트 착물의 제조 방법.

청구항 65

제64항에 있어서, 형성 단계 동안에, 분산물이 무정형 알루미늄 포스페이트인 방법.

청구항 66

제64항에 있어서, 형성 단계 동안에, 분산물이 결정질 알루미늄 포스페이트인 방법.

청구항 67

제64항에 있어서, 형성 단계 동안에, 분산물이 무정형 및 결정질 알루미늄 포스페이트의 조합인 방법.

청구항 68

제64항에 있어서, 추가 알루미늄 포스페이트를 생물활성물-알루미늄 포스페이트 착물에 첨가하는 추가 단계를 포함하는 방법.

청구항 69

중합체 결합 물질을 제64항에 따라 제조된 생물활성물-알루미늄 포스페이트 착물에 첨가하는 것을 포함하는 항미생물성 화학 조성물의 제조 방법이고, 여기서 조성물은 경화되었을 때, 수분에 노출시 생물활성 물질로부터 유래된 생물활성 구성성분의 조절 전달을 제공하는 것인 방법.

청구항 70

제64항에 있어서, 생물활성 구성성분의 조절 전달이 약 10 내지 900 ppm의 범위인 방법.

청구항 71

제64항에 있어서, 생물활성 구성성분의 조절 전달이 약 100 ppm 이상인 방법.

청구항 72

제64항에 있어서, 생물활성 구성성분의 조절 전달이 약 30 $\mu g/m^2$ 이상인 방법.

청구항 73

제64항에 있어서, 착물에서의 생물활성 물질의 양이 전체 착물의 약 1 내지 10 중량%의 범위인 방법.

청구항 74

제64항에 있어서, 포스페이트 대 알루미늄의 비율이 약 0.5:1 내지 1.5:1의 범위인 방법.

청구항 75

제64항에 있어서, 생물활성 물질이 금속 염을 포함하고, 금속 염은 첨가 단계 전에 리간드와 착물화된 것인 방법.

청구항 76

제75항에 있어서, 금속 염이 질산은이고, 리간드가 이미다졸, 치환된 이미다졸, 암모니아, 및 이들의 조합으로 이루어진 군으로부터 선택된 것인 방법.

청구항 77

제75항에 있어서, 착물이 금속 산화물을 추가로 포함하는 것인 방법.

청구항 78

제64항에 있어서, 생물활성 물질이 금속 염을 포함하고, 착물이 금속 산화물을 추가로 포함하는 것인 방법.

청구항 79

제75항에 있어서, 알루미늄 공급원이 수산화알루미늄이고, 포스페이트 공급원이 인산이고, 여기서 알루미늄 공급원은 수성 형태이며, 착물화된 금속 염과 예비혼합되어 착물화된 금속 염-수산화알루미늄 혼합물을 형성하고,

첨가 단계 동안에 착물화된 금속 염-수산화알루미늄 혼합물을 인산에 첨가하는 것인 방법.

청구항 80

알루미늄 공급원을 적합한 pH의 수용액에서 포스페이트 공급원과 조합하여 알루미늄 포스페이트의 분산물을 형성함으로써 알루미늄 포스페이트를 형성하는 단계;

형성 단계 동안에 또는 후에 생물활성 물질을 첨가하여, 생물활성 물질이 알루미늄 포스페이트에 배치되어 생물활성물-알루미늄 포스페이트 착물을 형성하도록 하는 단계; 및

중합체 결합 물질을 생물활성물-알루미늄 포스페이트 착물과 조합하여 항미생물성 화학 조성물을 형성하는 단계

를 포함하고; 여기서, 조성물은 경화되었을 때, 수분에 노출시 약 10 내지 900 ppm의, 생물활성 물질로부터 유래된 생물활성 구성성분의 조절 전달을 제공하는 것인, 알루미늄 포스페이트 내에 분산된 생물활성 물질을 포함하는 항미생물성 화학 조성물의 제조 방법.

청구항 81

제80항에 있어서, 첨가 단계를 형성 단계 후에 수행하고, 생물활성 물질이 알루미늄 포스페이트와 물리적으로 조합되는 것인 방법.

청구항 82

제81항에 있어서, 생물활성 물질이 은 염, 구리 염, 아연 염, 칼슘 염, 및 이들의 조합으로 이루어진 군으로부터 선택된 금속 염인 방법.

청구항 83

제80항에 있어서, 첨가 단계를 형성 단계 동안에 수행하고, 생물활성 물질이 알루미늄 포스페이트와 화학적으로 결합되는 것인 방법.

청구항 84

제83항에 있어서, 생물활성 물질이 은, 구리, 아연, 칼슘, 및 이들의 조합으로 이루어진 군으로부터 선택된 금속 이온인 방법.

청구항 85

제80항에 있어서, 형성 단계 동안에, 분산물이 무정형 알루미늄 포스페이트인 방법.

청구항 86

제80항에 있어서, 형성 단계 동안에, 분산물이 결정질 알루미늄 포스페이트인 방법.

청구항 87

제80항에 있어서, 형성 단계 동안에, 분산물이 무정형 및 결정질 알루미늄 포스페이트의 조합인 방법.

청구항 88

제80항에 있어서, 형성 단계가:

알루미늄 염을 수용액에서 인산과 조합하고;

용액의 pH를 증가시키기에 충분한 양의 염기 물질을 첨가하여 겔 구조를 형성하는 것을 포함하고, 여기서 겔은, 함께 결합된 무정형 알루미늄 포스페이트 입자의 3차원 구조를 포함하는 것인 방법.

청구항 89

제88항에 있어서, 알루미늄 염이 질산알루미늄이고, 염기 물질이 수산화암모늄인 방법.

청구항 90

제88항에 있어서, 중합체 결합제 물질의 조합 단계 전에, 겔을 그로부터 원치않는 물질을 제거하기에 충분한 승온으로 건조시키는 것을 추가로 포함하는 방법.

청구항 91

제90항에 있어서, 건조 단계를 약 200℃ 초과에서 수행하여 겔로부터 질산암모늄, 암모니아, 및 물을 제거하는 것인 방법.

청구항 92

제88항에 있어서, 중합체 결합제 물질의 조합 단계 전에, 겔을 승온에서 건조시켜 생물활성 물질의 조절 전달을 촉진하는 바람직한 다공도를 제공하는 것을 추가로 포함하는 방법.

청구항 93

제88항에 있어서, 무정형 알루미늄 포스페이트가 약 100 m^2/g 초과의 표면적을 갖는 것인 방법.

청구항 94

제80항에 있어서, 형성 단계가 수산화알루미늄과 인산을 조합하여 산성 알루미늄 포스페이트를 포함하는 용액을 형성하는 것을 포함하는 것인 방법.

청구항 95

제94항에 있어서, 첨가 단계가:

금속 염 형태의 생물활성 물질을 산성 알루미늄 포스페이트에 첨가하고;

생물활성 물질과 산성 알루미늄 포스페이트의 혼합물을 중화시켜 알루미늄 포스페이트를 형성하는 것

을 포함하는 것인 방법.

청구항 96

제95항에 있어서, 금속 염이 질산은이고, 혼합물을 알루민산나트륨으로 중화시키는 것인 방법.

청구항 97

제80항에 있어서, 조합 단계 전에, 혼합물을 약 200℃ 미만의 온도로 건조시키는 것인 방법.

청구항 98

제80항에 있어서, 착물이 약 20 m^2/g 미만의 표면적을 갖는 것인 방법.

청구항 99

제98항에 있어서, 표면적이 약 100 내지 250 m^2/g인 방법.

청구항 100

제80항에 있어서, 조절 전달이 약 100 ppm 이상인 방법.

청구항 101

제80항에 있어서, 생물활성물-알루미늄 포스페이트 착물이 약 1 내지 10 중량% 범위의 생물활성 물질을 포함하는 것인 방법.

청구항 102

제80항에 있어서, 화학 조성물의 총 중량을 기준으로, 약 0.1 내지 2 중량% 범위의 생물활성 물질을 포함하는 방법.

청구항 103

제80항에 있어서, 화학 조성물이 수분에 노출시 약 1,500 ppm 미만의 포스페이트 음이온의 조절 전달을 제공하도록 가공된 것인 방법.

청구항 104

제103항에 있어서, 포스페이트 음이온의 조절 전달이 약 100 내지 500 ppm인 방법.

청구항 105

알루미늄 공급원을 적합한 pH의 수용액에서 포스페이트 공급원과 조합하여 알루미늄 포스페이트의 분산물을 형성함으로써 알루미늄 포스페이트를 형성하는 단계;

형성 단계 후에 무정형 알루미늄 포스페이트에 생물활성 물질을 첨가하여 착물을 제공하며, 여기서 생물활성 물질이 알루미늄 포스페이트에 물리적으로 혼입되어 생물활성물-알루미늄 포스페이트 착물을 형성하는 것인 단계; 및

중합체 결합 물질을 착물과 조합하여 항미생물성 화학 조성물을 형성하는 단계

를 포함하고; 여기서, 조성물은 경화되었을 때, 수분에 노출시 100 ppm 이상의, 생물활성 물질로부터 유래된 생물활성 구성성분의 조절 전달을 제공하는 것인, 알루미늄 포스페이트와 조합된 생물활성 물질을 포함하는 항미생물성 화학 조성물의 제조 방법.

청구항 106

제105항에 있어서, 형성 단계 동안에, 분산물이 무정형 알루미늄 포스페이트인 방법.

청구항 107

제105항에 있어서, 형성 단계 동안에, 분산물이 결정질 알루미늄 포스페이트인 방법.

청구항 108

제105항에 있어서, 형성 단계 동안에, 분산물이 무정형 및 결정질 알루미늄 포스페이트의 조합인 방법.

청구항 109

제105항에 있어서, 알루미늄 포스페이트가 약 100 m^2/g 미만의 표면적을 갖는 것인 방법.

청구항 110

제105항에 있어서, 첨가 단계 동안에, 금속 이온 형태의 생물활성 물질의 일정량이 알루미늄 포스페이트에 화학적으로 결합되는 것인 방법.

청구항 111

제105항에 있어서, 형성 단계가:

알루미늄 염을 수용액에서 인산과 조합하고;

용액의 pH를 증가시키기에 충분한 양의 염기 물질을 첨가하여 겔 구조를 형성하는 것을 포함하고, 여기서 겔은, 함께 결합된 무정형 알루미늄 포스페이트 입자의 3차원 구조를 포함하는 것인 방법.

청구항 112

제105항에 있어서, 조합 단계가:

수산화알루미늄과 인산을 조합하여 산성 알루미늄 포스페이트 축합물을 포함하는 용액을 형성하고;

축합물을 중화시켜 무정형 알루미늄 포스페이트를 형성하는 것

을 포함하는 것인 방법.

청구항 113

수산화알루미늄과 인산을 조합하여 산성 알루미늄 포스페이트 축합물을 포함하는 용액을 형성하는 단계;

산성 알루미늄 포스페이트 축합물의 형성 단계 동안에 또는 후에 생물활성 물질을 조합하여, 생물활성 물질을 포함하는 생물활성물-알루미늄 포스페이트 착물을 포함하는 혼합물을 형성하는 단계; 및

중합체 결합 물질을 착물과 조합하여 화학 조성물을 형성하는 단계

를 포함하는, 알루미늄 포스페이트와 조합된 생물활성 물질을 포함하는 항미생물성 화학 조성물의 제조 방법.

청구항 114

제113항에 있어서, 착물이 무정형 알루미늄 포스페이트를 포함하는 것인 방법.

청구항 115

제113항에 있어서, 착물이 결정질 알루미늄 포스페이트를 포함하는 것인 방법.

청구항 116

제113항에 있어서, 산성 알루미늄 포스페이트 착물에 중화제를 첨가하여 그의 pH를 증가시키는 단계를 추가로 포함하는 방법.

청구항 117

제113항에 있어서, 착물이 알루미늄 포스페이트와 화학적으로 결합된 생물활성 물질을 포함하는 것인 방법.

청구항 118

제113항에 있어서, 생물활성 물질의 조합 단계 후에, 혼합물에 추가 수산화알루미늄을 첨가하는 것인 방법.

청구항 119

제113항에 있어서, 수산화알루미늄과 인산의 조합 단계 동안에, 수산화알루미늄을 슬러리 형태로 제공하여 인산에 서서히 첨가하는 것인 방법.

청구항 120

제113항에 있어서, 수산화알루미늄과 인산의 조합 단계 동안에, 인산을 수산화알루미늄에 서서히 첨가하는 것인 방법.

청구항 121

제113항에 있어서, 수산화알루미늄과 인산의 조합 단계가:

인산을 제1 양의 수산화알루미늄에 첨가하여 산성 알루미늄 포스페이트 용액을 형성하는 단계; 및

산성 알루미늄 포스페이트 용액을 제2 양의 수산화알루미늄에 첨가하여 축합물을 형성하는 단계

를 포함하는 것인 방법.

청구항 122

제113항에 있어서, 생물활성물-알루미늄 포스페이트 착물이 약 20 m^2/g 미만의 표면적을 가지며, 조성물이 경화되었을 때, 수분에 노출시 약 10 내지 900 ppm의 생물활성 구성성분의 조절 전달을 제공하는 것인 방법.

청구항 123

제116항에 있어서, 중화제가 수산화알루미늄, 수산화칼슘, 및 이들의 조합으로 이루어진 군으로부터 선택되고, 생물활성 물질 구성성분이 은, 구리, 아연, 칼슘, 및 이들의 조합으로 이루어진 군으로부터 선택된 금속 이온인 방법.

청구항 124

제113항에 있어서, 중합체 결합 물질의 조합 단계 전에, 알루미늄 포스페이트를 약 200℃ 미만의 온도로 건조시키는 것인 방법.

청구항 125

제113항에 있어서, 생물활성 물질이 은 염, 구리 염, 아연 염, 칼슘 염, 및 이들의 조합으로 이루어진 금속 염의 군으로부터 선택된 것인 방법.

청구항 126

생물활성 물질을 질산알루미늄 및 인산과 조합하여 용액을 형성하고, 용액을 중화시켜 무정형 알루미늄 포스페이트를 포함하는 겔을 형성함으로써, 생물활성물-알루미늄 포스페이트 착물을 형성하며, 여기서 겔은 무정형 알루미늄 포스페이트의 백본에 혼입된 생물활성 물질의 생물활성 구성성분을 포함하는 것인 단계; 및

중합체 결합 물질을 착물과 조합하여 화학 조성물을 형성하는 단계

를 포함하는, 무정형 알루미늄 포스페이트와 조합된 생물활성 물질을 포함하는 항미생물성 화학 조성물의 제조 방법.

청구항 127

제126항에 있어서, 착물이 약 100 m^2/g 초과의 표면적을 가지며, 조성물이 수분에 노출시 약 10 내지 900 ppm의 생물활성 구성성분의 조절 전달을 제공하는 것인 방법.

청구항 128

제126항에 있어서, 수산화암모늄을 첨가함으로써 용액을 중화시키고, 생물활성 물질 구성성분이 은, 구리, 아연, 칼슘, 및 이들의 조합으로 이루어진 군으로부터 선택된 금속 이온인 방법.

청구항 129

제126항에 있어서, 중합체 결합 물질의 조합 단계 전에, 무정형 알루미늄 포스페이트를 약 200℃ 초과의 온도로 건조시키는 것인 방법.

청구항 130

제126항에 있어서, 생물활성 물질이 은 염, 구리 염, 아연 염, 칼슘 염, 및 이들의 조합으로 이루어진 금속 염의 군으로부터 선택된 것인 방법.

청구항 131

생물활성 물질을 수산화알루미늄과 조합하여 혼합물을 형성하는 단계;

혼합물을 인산에 첨가하여 생물활성 물질을 포함하는 생물활성물-알루미늄 포스페이트 착물을 형성하는 단계; 및

중합체 결합 물질을 착물과 조합하여 화학 조성물을 형성하는 단계

를 포함하는, 알루미늄 포스페이트와 조합된 생물활성 물질을 포함하는 항미생물성 화학 조성물의 제조 방법.

청구항 132

제131항에 있어서, 생물활성 물질이 금속 염을 포함하는 것인 방법.

청구항 133

제132항에 있어서, 조합 단계 전에, 금속 염을 리간드와 조합함으로써 착물을 형성하는 것인 방법.

청구항 134

제133항에 있어서, 금속 염이 질산은이고, 리간드가 암모니아, 이미다졸, 치환된 이미다졸, 및 이들의 조합으로 이루어진 군으로부터 선택된 것인 방법.

청구항 135

제133항에 있어서, 생물활성물-알루미늄 포스페이트 착물이 금속 산화물을 추가로 포함하는 것인 방법.

청구항 136

제131항에 있어서, 생물활성물-알루미늄 포스페이트 착물이 금속 산화물을 추가로 포함하는 것인 방법.

청구항 137

제131항에 있어서, 첨가 및 조합 단계를 실온에서 수행하는 것인 방법.

청구항 138

제131항에 있어서, 수산화알루미늄이 무정형 수산화알루미늄을 포함하는 것인 방법.

청구항 139

제131항에 있어서, 착물이 무정형 알루미늄 포스페이트를 포함하는 것인 방법.

청구항 140

제131항에 있어서, 착물이 결정질 알루미늄 포스페이트를 포함하는 것인 방법.

명 세 서

기 술 분 야

[0001] 본 발명은 항미생물성을 갖는 화학 조성물, 보다 구체적으로 1종 이상의 항미생물제를 포함하는 알루미늄 포스페이트 착물을 포함하도록 특수하게 제형화된 화학 조성물, 및 그의 제조 방법에 관한 것이다.

배 경 기 술

[0002] 예를 들어 기저 기판 표면 상에 필름층을 형성하기 위한 코팅 조성물 등의 형태로 제공되는, 항미생물성을 제공하는 1종 이상의 항미생물제를 포함하도록 제형화된 화학 조성물은 당업계에 공지되어 있다. 이러한 항미생물성 화학 조성물은 원치않는 미생물에 대하여 어느 정도의 보호를 제공하는 것으로 공지된 항미생물제를 이용한다.

[0003] 당업계에 공지된 통상의 항미생물성 화학 조성물, 예를 들어 수계 페인트 및 코팅물과 같은 제형물은 보관하는 동안에 미생물에 의한 변질로부터 액체 조성물을 보존하기 위해 그에 혼입된 살생물제를 포함한다. 항미생물성 보호는 이러한 통상의 페인트 및 코팅물로부터, 사용 중인 적용된 건조 필름의 곰팡이 및/또는 흰곰팡이의 성장에 의한 변조를 방지하는 작용제의 혼입에 의해 제공된다.

[0004] 통상의 항미생물성 화학 조성물이 원치않는 미생물에 대하여 어느 정도의 보호를 제공하는 것으로 공지되었지만, 제공된 보호는 활성 수준, 및 원치않는 미생물에 대하여 목적하는 수준의 저항성을 제공할 수 있는 시간에 있어서 다소 제한적이다. 이는 주로 제형의 특성 및 그 제형에 배치된 항미생물제의 제한된 활성으로 인해, 원치않는 미생물에 대하여 고활성의 장기 저항성을 제공할 수 없기 때문이다. 따라서, 이러한 통상의 항미생물성 화학 조성물이 미생물에 대하여 어느 정도의 저항성을 제공할 수 있지만, 특정한 최종 용도에 따른 적용의 요구를 충족시키기에 충분한 목적하는 또는 필요한 수준의 미생물 방제를 제공할 수는 없다.

[0005] 감염으로 인한 질병 및/또는 제품 변질의 이차적인 효과를 방지하기 위해 광범위한 박테리아, 곰팡이, 흰곰팡이, 및 다른 유해한 미생물에 대하여 장기 활성 저항성을 제공하는 것에 대한 요구가 충족되지 않고 있다. 민감한 환경과 접촉하는 표면으로부터 감염 및 제품 변질을 방지하는 것이 중요한, 목표로 하는 최종 용도에 따른 적용의 예는 병원 및 건강 관리 시설; 주방 및 식품 가공 및 보관 장소; 낙농장; 양조장; 욕실 및 세면실 시설; 호텔; 학교, 레크리에이션, 오락, 및 스포츠 시설을 포함한다. 존재하는 항미생물성 첨가제가 어느 정도의 항미생물성 작용을 제공할 수 있지만, 페인트 및 코팅물과 같은 제형물에서의 그의 유효성은 (1) 제형물

의 비용 제약; (2) 비-목표 독성과 관련있는 사용 한계; (3) 제형물에의 혼입에 대한 실용 한계를 초과하고; (4) 보호 물품의 표면으로의 전달 메카니즘에 의해 제한될 수 있는, 항미생물성 작용을 달성하기 위해 필요한 물질의 양에 의해 제한된다.

[0006] 따라서, 항미생물성 화학 조성물이 공지된 항미생물성 화학 조성물과 비교하여, 질병 및 제품 변질의 이차적인 효과를 방지하기 위해 박테리아, 곰팡이, 흰곰팡이, 및 다른 미생물 종을 포함하는 광범위한 미생물에 대하여 목적하는 장기 활성 저항성을 제공하는 방식으로 제형화됨으로써, 특정한 최종 용도에 따른 적용의 요구를 충족시키는 것이 바람직하다. 이러한 항미생물성 화학 조성물이 상이한 최종 용도에 따른 적용과 관련하여 특정한 항미생물성 요구를 효과적으로 다루기 위해 제형의 성능 특징에 있어서의 변화를 맞춤 변경, 조정 및/또는 맞추는 능력을 가능하게 하는 방식으로 가공되는 것이 바람직하다. 또한, 이러한 항미생물성 화학 조성물이 쉽게 이용가능한 물질로부터 제형화되고/거나 신형 설비의 사용을 필요로 하지 않고, 지나치게 노동 집약적이지 않으며, 또한 경제적으로 실현가능한 방식으로 화학 조성물의 제조를 용이하게 하는 방법에 의해 제조되는 것이 바람직하다.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0007] 본원에 기재된 항미생물성 화학 조성물은 일반적으로 결합 중합체 내에 분산된 알루미늄 포스페이트 (AlP) 고체를 포함한다. 1종 이상의 생물활성 물질이 AlP 내에 배치되거나 AlP와 조합되어 생물활성물-AlP 착물을 형성한다. 착물의 특징은 조성물이 건조 필름 또는 복합재의 형태로 제공될 때, 생물활성 구성성분 (수분에 노출시 생물활성 물질로부터 유래된 것)의 필름 또는 복합재 표면에의 조절 전달을 제공하여 목적하는 수준의 항미생물성 저항성을 제공하도록 특수하게 가공된다는 것이다. 착물을 형성하기 위해 사용된 AlP는 무정형 형태, 결정질 형태, 또는 이들의 조합 형태일 수 있다. 예시 실시양태에서, AlP는 무정형 AlP를 포함한다.

[0008] 착물을 형성하기 위해 사용된, 생물활성 물질 또는 그로부터 유래된 생물활성 구성성분은 착물을 제조하기 위해 사용된 특정 방법에 따라, AlP 중합체의 백본(backbone)과 화학적으로 결합할 수 있거나, 예를 들어 그의 백본에 제공될 수 있거나, 또는 AlP 중합체에 물리적으로 혼입, 망상화, 캡슐화, 또는 뒤얽혀 있을 수 있다. 생물활성 물질은 유기물일 수 있고/거나 금속 염 또는 산화물, 예컨대 은 염, 구리 염, 아연 염, 칼슘 염, 및 이들의 조합을 포함하는 것들일 수 있고/거나 금속 이온, 예컨대 은, 구리, 아연, 칼슘, 및 이들의 조합을 포함하는 것들일 수 있다. 또한, 생물활성 물질은 아연, 구리, 마그네슘, 바륨, 칼슘의 산화물 및 이들의 조합을 포함할 수 있으나 이들로 제한되지는 않고, 생물활성 물질의 항미생물성 유효성 및/또는 광 안정성을 증가시킬 수 있는 1종 이상의 금속 산화물을 포함할 수 있다. 추가로, 생물활성 물질은 생물활성물-AlP 착물을 형성하기 위해 조합되기 전에 착물화될 수 있고, 이는 생물활성 물질의 색 또는 광 안정성을 증가시킬 수 있다. 예를 들어, 생물활성 물질이 금속 염, 예컨대 질산은을 포함하는 경우에, 금속 염이 리간드, 예컨대 암모니아, 이미다졸, 치환된 이미다졸, 및 이들의 조합으로 착물화된 후에, 착물화된 금속 염이 생물활성물-AlP 착물을 형성하기 위해 사용되는 다른 성분과 조합될 수 있다. 조성물을 형성하기 위해 사용되는 결합 중합체는 폴리우레탄, 폴리에스테르, 용매계 에폭시, 무용매 에폭시, 수계 에폭시, 에폭시 공중합체, 아크릴, 아크릴 공중합체, 실리콘, 실리콘 공중합체, 폴리실록산, 폴리실록산 공중합체, 알키드 및 이들의 조합을 포함할 수 있다.

[0009] 예시 실시양태에서, AlP는 화학 조성물이 경화된 형태, 예를 들어 코팅 필름 또는 복합재 구조인 경우에, 약 5 내지 1,000 ppm, 바람직하게는 약 10 내지 900 ppm, 가장 바람직하게는 약 15 내지 800 ppm의 생물활성 구성성분의 조절 전달을 제공하도록 가공된다. 예시 실시양태에서, 적어도 100 ppm 이상의 생물활성 구성성분의 조절 전달을 제공하는 것이 바람직하다. 착물에서의 생물활성 물질, 예를 들어 Ag의 양은 착물의 총 중량을 기준으로, 약 1 내지 10 중량%, 바람직하게는 약 2 내지 8 중량%, 보다 바람직하게는 약 3 내지 6 중량%의 범위일 수 있다. 착물에서의 포스페이트 대 알루미늄의 비율은 약 0.5:1 내지 1.5:1의 범위이다. 화학 조성물 중의 생물활성물-AlP 착물은 건조 필름 중량의 약 0.1 내지 2%를 차지하거나, 페인트 중에 20 내지 1,000 ppmw의 생물활성 구성성분, 예를 들어 Ag을 포함한다. 바람직한 실시양태에서, 유효 용출 속도, 즉 생물활성물-AlP 착물을 포함하는 경화된 코팅물 또는 경화된 복합재의 표면 상에 방출된 생물활성 구성성분, 예를 들어 Ag의 양은 적어도 약 30 $\mu g/m^2$, 바람직하게는 약 36.9 $\mu g/m^2$이거나 또는 생물활성을 위한 세정액에서 > 2 $\mu g/L$이다.

[0010] 예시 실시양태에서, 항미생물성 화학 조성물은 또한, 예를 들어 금속성 기판과 함께 사용하기 위한 코팅물로서 제형화될 경우에, 목적하는 수준의 내식성을 제공할 수 있다. 이러한 실시양태에서, AlP는 생물활성 구성성분의 조절 방출/전달 이외에도, 수분에 노출시 부동태화 음이온, 예컨대 포스페이트 음이온의 조절 전달을 제공하

도록 제형화된다. 예시 실시양태에서, 이러한 항미생물성 화학 조성물은 약 100 ppm 초과의 포스페이트 음이온의 조절 전달을 제공할 수 있다.

[0011] 본원에 기재된 항미생물성 화학 조성물은 먼저 바람직한 알루미늄 공급원을, AlP를 형성하는 적합한 반응 조건하에, 예를 들어 적합한 pH 및 적합한 온도의 수용액에서 바람직한 포스페이트 공급원과 조합함으로써 AlP를 형성하는 것을 포함하는 생물활성물-AlP 착물을 형성하는 단계에 의해 제조된다. 생물활성 물질이 AlP에 분산되거나 그와 조합되도록, 생물활성 물질을 AlP를 형성하는 단계 동안에 또한/또는 그 후에 AlP에 첨가함으로써, 생물활성물-AlP 착물을 형성한다. 필요에 따라, 추가 AlP를 착물과 결합 중합체의 조합 전에 생물활성물-AlP 착물에 첨가할 수 있다.

[0012] 한 예시 제조 방법에 따라서, 생물활성 물질을 AlP가 형성된 후에 AlP에 첨가하고, 이 경우에 생성된 생물활성물-AlP 착물은 AlP 중합체에 물리적으로 혼입, 망상화, 캡슐화 또는 뒤얽혀 있는 생물활성 물질을 포함한다. 또 다른 예시 제조 방법에 따라서, 생물활성 물질을 AlP를 형성하는 동안에 AlP에 첨가하고, 이 경우에 생성된 생물활성물-AlP 착물은 ALP와 동일 반응계에서(in-situ) 형성되고, 예를 들어 ALP 중합체 백본의 일부로서, AlP 중합체에 화학적으로 결합된 생물활성 물질의 생물활성 구성성분을 포함한다.

[0013] 예를 들어, 생물활성물-알루미늄 포스페이트 착물은 알루미늄 공급원 (예컨대, 무정형 및/또는 결정질 형태의 수산화알루미늄)을 생물활성 물질의 존재하에 포스페이트 공급원 (예컨대, 인산)과 조합하여 반응 혼합물을 형성함으로써 제조된다. 생물활성 물질은 별도의 성분으로서 또는 알루미늄 공급원과 포스페이트 공급원 중 어느 하나 또는 이들 둘 모두와 예비혼합된 형태로 제공될 수 있다. 알루미늄 공급원과 포스페이트 공급원 중 어느 하나 또는 이들 둘 모두는 수용액의 형태로 제공될 수 있다. 반응 혼합물을 반응시켜 (예를 들어, 실온에서) 생물활성물-알루미늄 포스페이트 착물을 형성하고, 여기서 생물활성 물질은 알루미늄 포스페이트와 결합된다. 예를 들어, 생물활성 물질은 이미다졸 또는 암모니아와 착물화될 수 있고/거나 아연 및/또는 구리의 산화물과 조합될 수 있는 질산은일 수 있다. 이렇게 형성된 생물활성물-알루미늄 포스페이트 착물은 바람직한 중합체 결합제와 조합되어 본원에 기재된 항미생물성 화학 조성물을 형성한다.

[0014] 본원에 기재된 항미생물성 화학 조성물은 공지된 항미생물성 화학 조성물과 비교하여, 질병 및 제품 변질의 이차적인 효과를 방지하기 위해 박테리아, 곰팡이, 흰곰팡이, 및 다른 미생물 종을 포함하는 광범위한 미생물에 대하여 장기 활성 저항성을 제공하도록 특수하게 가공됨으로써, 특정한 제형의 최종 용도에 따른 적용의 요구를 충족시키고, 여기서 이러한 적용은 페인트, 코팅물, 접착제, 복합재, 시멘트, 플라스틱 등을 포함한다. 이러한 항미생물성 화학 조성물은 쉽게 이용가능한 물질로부터 제조되고/거나 신형 설비를 피하고, 지나치게 노동 집약적이지 않으며, 또한 경제적으로 실현가능한 방식으로 제조를 용이하게 하는 방법에 의해 제조된다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0015] 본원에 기재된 항미생물성 화학 조성물은 일반적으로 조성물의 벌크 매트릭스를 형성하는 결합 중합체 내에 분산된 알루미늄 포스페이트 (AlP)를 포함한다. 1종 이상의 생물활성 물질이 알루미늄 포스페이트 내에 배치됨으로써, 생물활성물-AlP 착물을 형성하고, 알루미늄 포스페이트는 수분에 노출시 생물활성 물질로부터 유래된 생물활성 구성성분의 조절 전달 또는 방출을 제공하도록 특수하게 가공된다. 이러한 항미생물성 화학 조성물은 본원에 기재된 다양한 방법에 의해 제조되고, 페인트, 코팅물, 접착제, 복합재, 시멘트, 플라스틱 등으로서 사용되도록 제형화될 수 있다.

[0016] 이와 관련하여 유용한 알루미늄 포스페이트는 무정형 알루미늄 포스페이트, 결정질 알루미늄 포스페이트, 및 이들의 조합을 포함한다. 이와 관련하여 유용한 알루미늄 포스페이트의 예는 무정형 알루미늄 포스페이트 (AAlP)이고, 바람직한 AAlP는 무정형 알루미늄 오르토포스페이트이다. AAlP가 이들을 생물활성 물질에 대한 캐리어로서 사용하기에 매우 적합하게 만드는 특별한 특징적인 성질을 갖는 것으로 확인되었기 때문에 AAlP의 사용이 바람직하지만, 결정질 AlP, 및 무정형 및 결정질 AlP의 조합 또한 이와 관련하여 유용하고 본원에 기재된 항미생물성 화학 조성물의 범주 내에 포함되는 것으로 이해된다.

[0017] 예시 실시양태에서, 무정형 알루미늄 오르토포스페이트는 무정형 알루미늄 히드록시 포스페이트이다. 무정형 알루미늄 히드록시 포스페이트는 조성물 내에서 균일한 분산 성질을 제공하고 분산물은 제형의 저장 수명 동안에 안정하게 유지된다. 무정형 알루미늄 히드록시 포스페이트의 히드록실 함량은 제형의 결합 중합체의 적합한 기, 예를 들어 카르복실 기, 아미노 기, 히드록실 기, 산 기 등과의 수소 결합을 제공함으로써 매트릭스 안정성을 제공한다. 이러한 특징은 무정형 알루미늄 히드록시 포스페이트 고유의 것이고, 결정질 또는 다른 유형의 무정형 포스페이트에서는 나타나지 않으며, 이러한 이유 때문에 균일한 분산 성질을 제공하는 데에 도움이

된다.

[0018] 본원에 기재된 항미생물성 화학 조성물을 형성하기 위해 사용되는 AIP는 이러한 최종 용도에 따른 적용을 실시하는 데에 유용한 매우 다양한 결합 중합체 또는 결합 중합체 시스템과 높은 수준의 상용성을 갖도록 특수하게 고안됨으로써, 다수의 상이한 최종 용도에 따른 산업에서 다양한 최종 용도에 따른 적용의 요구 및 요건을 충족시키도록 이러한 조성물을 제형화하는 데에 있어서 높은 수준의 융통성 및 선택 가능성을 제공한다.

[0019] 화학 조성물 내에서 생물활성 구성성분의 조절 전달 및/또는 방출은 코팅물의 형태이든지 또는 복합재의 형태이든지에 상관없이, 조성물의 벌크 매트릭스를 통한 생물활성 구성성분의 확산 속도에 크게 좌우된다. 생물활성 구성성분의 확산 속도는 생물활성 구성성분 및 물 수송을 조절하는 벌크 매트릭스의 구조적 특징에 좌우된다. 이러한 특징은 가교 밀도, 안료 대 부피 비율 (PVC), 생물활성 물질 캐리어의 특성, 요소의 친수성, 및 요소의 극성을 포함하나, 이들로 제한되지는 않는다.

[0020] 본원에 기재된 항미생물성 화학 조성물은 생물활성 물질 캐리어로서 AIP를 사용하고, 상기 AIP는 목적하는 수준의 항미생물성 저항성을 제공하기 위해 수분의 그에 함유된 생물활성 물질로의 조절 확산, 및 생물활성 구성성분의 이러한 AIP를 포함하는 코팅물 또는 복합재의 표면으로의 확산 또는 전달 또는 방출을 제공하도록 가공된다. 따라서, 생물활성 물질은 생물활성 구성성분의 용해도를 조정 및 조절하고, 또한 용해된 생물활성 구성성분의 조성물 필름 또는 복합재 벌크 매트릭스를 통한 확산을 조절하도록 특수하게 제조된 AIP에 혼입된다.

[0021] 수분의 확산 및 생물활성 구성성분의 전달에 영향을 미치는 것으로 발견된 AIP의 특징/파라미터는 AIP 분자의 다공도이다. 본원에 기재된 AIP 착물의 특징은 합성 방법의 선택에 의해 이러한 착물의 형태 및 다공도를 가공하는 능력이다. 본원에서 사용된 용어 "가공된 다공도"는 입자 공극으로 이루어진 고체 물질 내에 존재하는 공간, 입자 응집물에서의 입자 사이의 사이 공간, 및 집합체에서의 응집물 사이의 사이 공간의 부피로서 정의된다. 고체 및 안료의 다공도 성질을 특징화하기 위해 수은 다공도 측정법이 사용된다. 주요 측정치는 하기를 포함한다:

[0022] 1. 총 침투 부피 (ml/g) - 압력의 함수로서 수은이 흡수될 수 있는 샘플 내의 전체 공간을 측정한다.

[0023] 2. 총 세공 면적 (m^2/g) - 부피를 면적으로 전환하고 어느 정도의 면적이 총 침투 부피에 의해 차지되는지를 정의한다.

[0024] 3. 평균 세공 부피 (4V/A = μ) - 부피를 면적으로 나눈 값, 즉 평균적으로 상이한 세공 크기가 되는 부피의 양을 나타낸다.

[0025] 4. BET (m^2/g) - 시험 조건하에 질소 기체에 접근가능한 총 표면적의 측정치이다. BET와 다공도는 상관성이 있다.

[0026] 생물활성 물질로서 금속 염 또는 금속 이온, 예를 들어 은을 포함하고 졸-겔 방법 (하기에 더욱 상세히 설명됨)에 의해 형성된 AIP 착물은 매우 큰 표면적 및 다공도의 응집물에 혼입된 나노 크기의 1차 입자의 형성을 초래한다. 이러한 큰 표면적 및 다공도를 갖는 것의 장점은 물과의 최적의 확산 접촉 및 결합 중합체 벌크 매트릭스에 의해 형성된 필름에서의 은 이온의 후속 방출을 보장함으로써, 필름 또는 복합재를 통한 착물의 균일한 분포를 촉진하고, 또한 물과의 접촉시 착물로부터 생물활성 물질의 상대적으로 신속한 방출을 촉진하는 것이다.

[0027] 생물활성 물질로서 금속 염 또는 금속 이온, 예를 들어 은을 포함하고 졸-겔 방법에 의해 제조된 AIP 착물은 약 100 내지 250 m^2/g, 바람직하게는 약 125 내지 200 m^2/g, 가장 바람직하게는 약 140 내지 160 m^2/g 범위의 BET 표면적을 갖는다. 이러한 AIP 착물은 약 1 내지 2 mL/g, 바람직하게는 약 1.3 내지 1.8 mL/g의 총 침투 부피를 갖는다. 이러한 AIP 착물은 약 0.02 내지 0.06 ㎛, 바람직하게는 약 0.04 내지 0.05 ㎛의 평균 세공 부피를 갖는다.

[0028] 이와 달리, 생물활성 물질로서 금속 염 또는 금속 이온, 예를 들어 은을 포함하고 침전 또는 축합 방법 (하기에 더욱 상세히 설명됨)에 의해 형성된 AIP 착물은 상대적으로 낮은 표면적 및 낮은 다공도의 응집물에 혼입된 나노 크기의 1차 입자의 형성을 초래한다. 낮은 표면적 및 다공도를 갖는 것의 장점은 물과의 감소한 수준의 확산 접촉 및 결합 중합체 벌크 매트릭스에 의해 형성된 필름 또는 복합재에서의 은 이온의 후속 방출을 보장함으로써, 필름 또는 복합재를 통한 착물의 균일한 분포를 촉진하고, 또한 물과의 접촉시 AIP 착물로부터 생물활성 물질의 상대적으로 느린 방출을 촉진하는 것이다.

[0029] 생물활성 물질로서 금속 염 또는 금속 이온, 예를 들어 은을 포함하고 침전 또는 축합 방법에 의해 제조된 AIP

착물은 약 2 내지 10 m^2/g 범위의 BET 표면적, 약 0.5 내지 0.9 mL/g 범위의 총 침투 부피, 및 약 0.4 내지 0.6 ㎛ 범위의 평균 세공 부피를 갖는다.

[0030] 따라서, 항미생물성 화학 조성물의 제조에 유용한 AIP의 특징은 이들이 바람직한 수분 확산 속도 및 최종 용도에 따른 적용에 사용될 때 목적하는 수준의 활성 및 항미생물성 저항성을 촉진하는 생물활성 구성성분의 전달을 제공하도록 계산된, 가공된 다공도를 갖는 것이다.

[0031] 따라서, AIP의 바람직한 다공도는 각각의 상이한 최종 용도에 따른 적용에 의해 요구되는 특정 요건에 크게 좌우되는 것으로 이해된다. 그러나, AIP의 다공도가 수분에 노출시 생물활성 구성성분을 신속하게 소멸시킬 정도로, 예를 들어 고활성이지만 현저히 단축된 유효 사용 기간을 제공할 정도로 너무 크지 않은 것이 일반적으로 바람직하다. 생물활성 물질의 부하 및/또는 사용되는 생물활성 물질의 유형이 또한 활성 및 유효 사용 기간에 영향을 미칠 것이다. 따라서, AIP의 다공도는 주어진 양 또는 주어진 생물활성 물질의 일반적인 부하 범위에서 목적하는 수준의 항미생물성 활성과 목적하는 유효 사용 기간 사이의 균형 또는 절충을 반영한다.

[0032] AIP의 다공도는 AIP의 제조 공정 동안에 또한/또는 형성 후속 공정, 예를 들어 건조 및/또는 다른 열 처리 (하기에 더욱 상세히 설명됨) 동안에 가공된다.

[0033] 본원에 기재된 AIP는, 생물활성 구성성분의 바람직한 조절 전달/방출을 제공하는 생물활성 물질 캐리어로서 사용되는 것 이외에도, 수분에 노출시 포스페이트 음이온의 전달을 통해 내식성 보호를 제공한다. 따라서, 항미생물성과 내식성을 둘다 요구하는 최종 용도에 따른 적용에서, 예를 들어 조성물이 금속 기판 상의 코팅물로서 사용되도록 제형화되는 경우에, AIP는 또한 금속 기판의 부동태화를 통해 목적하는 수준의 부식에 대한 보호를 제공하는 포스페이트 음이온의 조절 전달을 제공하도록 가공될 수 있다.

[0034] 이러한 내식성이 또한 바람직한 예시 실시양태에서, AIP는 최종 용도에 따른 적용에 사용되는 경화 필름 또는 복합재에 존재할 때, 약 50 내지 500 ppm, 바람직하게는 100 내지 200 ppm 범위의 부동태화 포스페이트 음이온을 방출하도록 가공된다. 전달되는 부동태화 음이온의 양은 사용되는 AIP의 부하 또는 양, 사용되는 결합 중합체의 유형, 보호되는 금속성 기판의 유형, 및 최종 용도에 따른 적용에서 존재하는 환경의 유형과 같은 다수의 상이한 인자에 좌우된다. 바람직한 실시양태에서, 보호되는 금속성 기판이 철을 포함하고 부식 환경이 물, 산소 및 다른 부식성 염을 포함하는 경우에, AIP는 대략 160 ppm의 부동태화 포스페이트 음이온을 방출하도록 가공된다.

[0035] 결합 중합체의 예는 공지된 항미생물성 화학 조성물을 제조하는 데에 현재 사용되고 있는 것들을 포함하고, 수계 중합체, 용매계 중합체, 혼성체 및 이들의 조합을 포함하는 일반 그룹으로부터 선택될 수 있다. 내식성 코팅 조성물의 제조에 유용한 수계 중합체의 예는 아크릴 및 아크릴 공중합체, 알키드, 에폭시, 폴리우레탄, 및 실리콘, 및 폴리실록산 중합체를 포함한다. 내식성 코팅 조성물의 제조에 유용한 용매계 및/또는 비수성 중합체의 예는 아크릴 및 아크릴 공중합체, 에폭시, 폴리우레탄, 실리콘, 폴리실록산, 폴리에스테르, 및 알키드를 포함한다. 바람직한 결합 중합체는 아크릴 공중합체 라텍스, 알키드, 폴리우레탄 및 에폭시 중합체를 포함한다.

[0036] 예시 실시양태에서, 항미생물성 화학 조성물은 예비경화된 또는 습윤화된 상태일 때 화학 조성물의 총 중량을 기준으로, 약 15 내지 75 중량%, 바람직하게는 약 20 내지 60 중량%, 보다 바람직하게는 약 20 내지 35 중량% 범위의 결합 중합체를 포함한다. 약 15 중량% 미만의 결합 중합체를 포함하는 항미생물성 화학 조성물은 목적하는 수준의 항미생물성 보호를 제공하기 위해 필요한 것보다 더 많은 양의 생물활성 물질 (생물활성물-AIP 착물로서 존재함)을 포함할 수 있다. 약 75 중량% 초과의 결합 중합체를 포함하는 항미생물성 화학 조성물은 목적하는 수준의 항미생물성 저항성을 제공하기에 불충분한 양의 생물활성 물질 (생물활성물-AIP 착물로서 존재함)을 포함할 수 있다. 결합 중합체의 특정한 양이 제공되었지만, 항미생물성 화학 조성물을 제형화하기 위해 사용되는 결합 중합체의 정확한 양은 사용되는 결합 중합체의 유형, 화학 조성물을 형성하기 위해 사용되는 다른 물질의 유형 및 양, 사용되는 생물활성 물질의 유형 및/또는 양, 및/또는 특정 최종 용도에 따른 항미생물성 적용과 같은 인자에 따라 달라질 것임을 알아야 한다.

[0037] 본원에 기재된 항미생물성 화학 조성물의 형성에 유용한 생물활성 물질 또는 작용제는 (1) 살생물성 (미생물의 사멸) 또는 정균성 (미생물의 비활성화)인 유기 분자를 포함하는 항미생물성 첨가제; (2) 미생물에 대하여 정균성 또는 살생물성 효과를 갖는 바이오-살충제, 전형적으로 펩티드; (3) 목표 생물체의 성장을 자연적으로 억제 또는 방지하는 천연 생성물; (4) 목표 미생물의 성장 및/또는 발달을 방해하는 "친화적" 박테리아; (5) 특정한 환경 조건에 반응하여 항미생물성 화학종을 방출하거나 생성하는 광물 및 금속; 및 (6) 이들의 조합을

포함하나, 이들로 제한되지는 않는 다양한 생물활성 물질 및/또는 화학종으로부터 선택될 수 있다. 유기 항미생물성 첨가제 및 금속-기재의 살생물제가 제형물에 항미생물성을 제공하기 위해 가장 일반적으로 사용되어 왔다.

[0038] 생물활성 물질 또는 작용제로서 유용한 금속-기재의 물질은 금속 이온 및 금속 염을 포함한다. 적합한 금속 이온은 은, 구리, 아연, 칼슘, 및 이들의 조합으로 이루어진 군으로부터 선택된 것들을 포함한다. 적합한 금속 염은 상기에 명시된 금속 이온의 염을 포함한다. 예시 실시양태에서, 은이 바람직한 생물활성 물질인데, 그 이유는 은은 그것이 혼입된 결합 중합체의 제형과 상용성이 될 수 있는 한, 또한 은이 수분에 노출시 일관되게 비용 효과적인 방식으로 표면에 전달되기 위해 제형 내에서 활성 상태로 유지될 수 있는 한, 다수의 장점을 갖기 때문이다. 은은 전형적인 유기 살생물제보다 더 높은 수준의 열 안정성을 가지며, 비-목표 생물체에 대하여 보다 더 낮은 수준의 독성을 갖고, 보다 더 높은 수준의 UV 안정성을 갖기 때문에, 유기 물질보다 유리하다.

[0039] 은 이온 (Ag^+)은 생물활성을 가지며, 충분한 농도에서 다양한 미생물을 사멸시킨다. 은은 항미생물성 활성이 입증되었고 특정 항생제-내성 박테리아에 대하여 효과적인 것으로 공지되었다. 은은 광범위한 스펙트럼의 항미생물성 활성을 가지며 포유류 세포에 대하여 최소한의 독성을 갖는다. 은은 전형적으로 캐리어 요소 (전형적으로, < 5 중량%의 농도 수준), 예컨대 유리, 실리카, 또는 제올라이트 내의 활성 성분으로서 제형화되거나 혼입된다. 은-기재의 물질이 미생물을 방제하는 작용 메카니즘은 주위 수분에 반응하여 은 이온이 방출되는 것을 포함한다. 은 이온은 물과의 접촉에 의해 형성되고, 이온은 생물체와 접촉하고 생물체에서의 다수의 결합 부위와 상호작용한다. 은 이온이 목표 생물체 대사 세포에 전달될 때, 세포의 호흡 기능이 변경되고 결국 중단되어, 세포 사멸을 초래한다.

[0040] 생물활성 물질로서 사용하기에 적합한 은 공급원은 질산은 및 염화은과 같은 은 염을 포함하고, 여기서 질산은 ($AgNO_3$)이 바람직하다. 질산은은 고용해성이고 (0℃의 물 100 밀리리터 당 122 그램), 상기 용해도는 제형물, 예컨대 항미생물성 코팅물 또는 복합재로부터 생물활성 물질의 조절 전달에 있어서 특별한 어려움을 제공한다. 질산은은 제형화된 코팅물 또는 복합재로부터 표면으로의 은 이온의 전달이 목표 사용 기간 동안에 최소한의 방제 수준을 제공하도록 균형을 맞춘 속도 및 농도로 조절되는 한, 생물활성 물질로서 유용하다. 너무 신속한 전달은 보호되는 표면 상에서 과도한 농도의 은 이온을 초래하여, 표면의 변색 및/또는 벌크 매트릭스에서의 질산은의 이용가능한 비축물의 신속한 고갈을 유도함으로써, 유효 사용 기간을 단축시킬 것이다.

[0041] 상기에서 논의된 바와 같이, 코팅물 또는 복합재의 벌크 매트릭스를 통한 생물활성 구성성분, 예를 들어 은 이온의 조절된 확산 속도 및 방출/전달을 제공하도록 가공된 다공도를 갖는 AIP가 제조된다. 질산은을 유리 요소로서 코팅물에 직접 혼입하는 것은 조절 방출을 허용하지 않을 것이다. 질산은 (또는 은 이온 공급원)을, 은 염의 용해도를 조정 및 조절하고, 용해된 은 이온의 필름 또는 복합재 매트릭스를 통한 확산을 조절하고, 또한 그에 따른 은 이온의 표면으로의 전달을 조절하도록 가공된 AIP에 혼입할 필요가 있다.

[0042] 상기에서 언급된 바와 같이, AIP의 다공도 성질은 가수분해 및 용해와 같은 반응을 조절하는 메카니즘을 제공하도록 가공된다. 또한, AIP는 벌크 매트릭스에서 특히 그 자체로 물을 유인하는 흡습성을 가져, 용해 상호작용을 위한 매체를 제공할 수 있다. 가공된 다공도의 특징은 조절 용해 및 이온 방출을 위한 기초가 된다. 은 이온의 경우에, 은 이온의 확산 속도는 AIP의 표면적 및 다공도에 좌우된다. 이는 또한 벌크 매트릭스를 통한 은 이온의 전체 수송 속도를 조정한다. 구체적으로, 물이 벌크 매트릭스와 접촉할 때 흡수되고, 또한 벌크 매트릭스의 물이 생물활성물-AIP 착물 내에 배치된 고용해성 은 (AIP 내에 물리적으로 캡슐화된 질산은으로서 또는 AIP에 화학적으로 결합된 은 이온으로서)과 접촉할 때 은 화학종이 용해되고 은 이온이 벌크 매트릭스를 통해 표면으로 확산된다.

[0043] 본원에 기재된 항미생물성 조성물의 특징은 이러한 조성물이 결합제 중합체의 벌크 매트릭스 내에 배치된 AIP 착물의 사용을 포함하는 것이고, 여기서 AIP 착물은 생물활성 구성성분 (착물로부터 방출된 것)의 결합제 중합체를 통한 이동 또는 확산 속도와 동일하거나 그와 상이할 수 있는 생물활성 구성성분의 전달 속도를 갖는다. 따라서, 제형화기는 생물활성 구성성분의 바람직한 방출 속도를 제공하도록 AIP 착물의 다공도를 가공할 수 있고, 또한 특정한 최종 용도에 따른 적용의 요구를 충족시키기 위해 조성물을 통한 생물활성 구성성분의 이동 또는 확산 속도에 영향을 미치도록 제형을 가공할 수 있다 (상이한 결합 중합체, 충전제 등을 사용함으로써). 이러한 특징, 즉 AIP 착물로부터의 생물활성 구성성분의 방출 속도, 및 이렇게 방출된 생물활성 구성성분의 결합제 중합체 벌크 매트릭스를 통한 이동 또는 확산 속도의 조합은, 다르게는 이용가능하지 않은 향상된 수준의 항미생물성 조성물 맞춤 변경을 제공한다. 방출 속도 및 이동/확산 속도의 이러한 맞춤 변경은 다양한 최종 용도

에 따른 적용을 다루기 위해 특수하게 맞춰질 수 있는 거대한 범위의 항미생물 조성물을 제공하는 작용을 한다.

[0044] AlP에 혼입되는 생물활성 물질의 양 또는 농도는 사용되는 생물활성 물질의 유형, 코팅물 또는 복합재 매트릭스를 형성하기 위해 사용되는 결합 중합체의 특성, AlP의 유형 (무정형, 결정질, 또는 이들의 조합), 및 AlP의 가공된 다공도와 같은 인자에 따라 달라질 수 있고 달라질 것이다. 따라서, 생물활성물-AlP 착물의 성질, 예컨대 생물활성 물질의 농도 및 AlP의 가공된 다공도는 다양한 노출 조건, 예컨대 온도, 상대 습도, 자외선 노출 등을 다루도록 조절될 수 있다.

[0045] 예시 실시양태에서, 충분한 양의 생물활성 물질이 존재하고, AlP가 건조 필름 또는 복합재의 형태로 제공될 때 조성물에서 약 5 내지 1,000 ppm, 바람직하게는 약 10 내지 900 ppm, 보다 바람직하게는 약 15 내지 800 ppm 범위의 생물활성 구성성분 (생물활성 물질과 수분의 접촉으로부터 유래된 것)의 조절 전달을 제공할 가공된 다공도를 갖는 것이 바람직하다. 생물활성 구성성분이 은 이온인 특정 실시양태에서, 은 이온의 바람직한 최적의 조절 전달은 약 100 ppm, 가장 바람직하게는 약 120 ppm을 초과한다. 바람직한 실시양태에서, 유효 용출 속도, 즉 생물활성물-AlP 착물을 포함하는 경화된 코팅물 또는 경화된 복합재의 표면 상에 방출된 생물활성 구성성분, 예를 들어 Ag의 양은 적어도 약 30 $\mu g/m^2$, 바람직하게는 약 36.9 $\mu g/m^2$이거나 또는 생물활성을 위한 세정액에서 > 2 $\mu g/L$이다.

[0046] 생물활성 구성성분의 바람직한 조절 전달을 제공하기 위해, 생물활성물-AlP 착물을 형성할 때 특정한 양의 생물활성 물질이 사용되는 것이 바람직하다. 예시 실시양태에서, AlP 착물은 생물활성물-AlP 착물의 총 중량을 기준으로, 약 1 내지 10 중량%의 생물활성 물질, 바람직하게는 약 2 내지 8 중량%의 생물활성 물질, 보다 바람직하게는 약 3 내지 6 중량%의 생물활성 물질을 포함한다.

[0047] 또한, 상승 효과를 갖는, 은 및 다른 생물활성 물질을 기재로 하는 혼합 항미생물성 착물이 합성될 수 있음이 발견되었다. 예를 들어, 은-AlP 착물 이외에도, 구리 및/또는 아연과 같은 다른 생물활성 금속이 하기에 더욱 상세히 설명된 바와 같이 합성 공정에 이들을 포함시킴으로써 착물에 혼입될 수 있다. 추가로, 특정한 유기 생물활성 분자가 물리적 흡착/캡슐화를 통해 또는 착물의 포스페이트 기와의 실제 반응/축합에 의해 착물에 도입될 수 있다. 이는 물의 확산에 의한 벌크 필름에서의 후속 가수분해를 통한 조절 방출 메카니즘을 제공한다.

[0048] AlP는 상기에 언급된 물질의 선택적 조합을 통해 제조될 수 있다. 하기의 선택된 제조 방법이 예로서 제공되었고, 구체적으로 기재된 방법 이외의 다른 제조 방법이 사용될 수 있음을 알아야 한다. AlP를 제조하는 본원에 기재된 방법이 무정형 알루미늄 포스페이트 (AAlP)의 형성을 언급하고 기재할 수 있지만, 이러한 방법이 또한 최종 용도에 따른 항미생물성 적용의 성능 성질에 따라, 다른 형태의 AlP, 예컨대 다양한 결정질 알루미늄 포스페이트 형태 및/또는 무정형 및 결정질 알루미늄 포스페이트의 혼합물을 제조하거나 이들을 제조하도록 적합화될 수 있음을 알아야 한다. 본원에 기재된 바와 같이 형성된 결정질 형태의 AlP의 예는 사방정계 및 삼사정계 알루미늄 오르토포스페이트를 포함하나, 이들로 제한되지는 않는다. 따라서, 본원에 기재된 방법은 특정한 최종 용도에 따른 적용 및 성능 성질에 따라, 상이한 형태의 AP를 제조하는 데에 유용한 것으로 이해된다.

[0049] 2원 축합 제조 방법

[0050] 일반적으로, AlP는 적합한 알루미늄 염, 예컨대 수산화알루미늄, 황산알루미늄 등을, 알루미늄 포스페이트를 형성하기 위해 선택된 알루미늄 염의 특정 유형에 따라 인산 또는 다른 인-함유 화합물 또는 물질과 조합함으로써 제조된 알루미늄 포스페이트 착물이다. 예시 실시양태에서, 바람직한 알루미늄 염은 수산화알루미늄 (ATH 또는 $Al(OH)_3$)이고, 인-함유 성분의 바람직한 공급원은 인산 (H_3PO_4)이다. 본원에 기재된 예시 방법은 축합 공정에 의해 AlP를 형성하는 것을 포함하고, 여기서 AlP는 슬러리 형태로 AlP 입자를 제조하기 위한 알루미늄 염 성분과 인-함유 성분의 축합 반응에 의해 형성된다. 상기 제조 방법으로부터 생성된 축합 고체의 조성은 알루미늄 금속 대 포스페이트 음이온의 비율에 좌우된다. 생성 착물, 즉 AlP의 성질은 알루미늄 염의 선택 가능성, 온도, 반응물의 물리적 상태, 반응물의 첨가 순서, 반응물의 첨가 속도, 교반 정도 및 지속기간, 1종 이상의 반응물의 전처리, 및 생성 축합 생성물의 후속 처리를 포함하는, 축합 반응 동안에 사용되는 공정 파라미터에 좌우된다.

[0051] 일반적으로 말해서, 상기 제조 방법으로부터 생성된 축합 고체는, 밀링(milling) 후에도, 다른 공지된 방법에 의해 제조된 알루미늄 포스페이트와 비교하여, 매우 낮은 흡유성 및 낮은 표면적 (BET 방법에 의해 측정됨)을 갖는다. 흡유량은 침지시켜 안료 주위의 공극 공간을 충전하는 데에 필요한 아마인유의 양 (그램 또는 파운드)으로서 정의되고 (ASTM - D-281-84), 이는 안료가 주어진 제형에서 흡수할 수 있는 결합제 요구량 또는 결합제 수지 양의 척도이다. 높은 결합제 요구량은 제형화 비용을 상승시키고 건조 필름의 특정한 장벽 성질에 영

향을 미칠 수 있다. 본원에 기재된 2원 축합 방법에 의해 제조된 알루미늄 포스페이트가 또한 큰 표면적 입자와 일반적으로 관련있는 물 흡착 성질 및 조절 방출 성질을 나타내므로, 이러한 점은 놀라운 점이다.

[0052] 예시 실시양태에서, 본원에서 제조된 축합 알루미늄 포스페이트는 약 50 미만, 바람직하게는 약 10 내지 40, 보다 바람직하게는 약 20 내지 30 범위의 흡유성을 갖는다. 이와 달리, 다른 방법에 의해 제조된 AlP는 약 50 초과, 전형적으로 약 50 내지 110 범위의 흡유성을 갖는다.

[0053] 예시 실시양태에서, 본원에서 제조된 AlP는 약 20 m^2/g 미만, 바람직하게는 약 10 m^2/g 미만의 표면적을 갖는다. 예시 실시양태에서, 표면적은 약 2 내지 8 m^2/g, 보다 바람직하게는 약 3 내지 5 m^2/g의 범위이다. 이와 달리, 다른 방법에 의해 제조된 AlP는 20 m^2/g 초과, 예를 들어 약 30 내지 135 m^2/g의 표면적을 갖는다.

[0054] 2원 축합물로서 제조된 AlP는 적어도 5가지의 상이한 방법에 따라 제조될 수 있고, 이들 방법 중 2가지는 염기 반응물을 산 반응물에 첨가하는 것을 포함하고, 이들 방법 중 1가지는 산 반응물을 염기 반응물에 첨가하는 것을 포함하고, 이들 방법 중 1가지는 염기 → 산(base-to-acid) 제자리 응집을 포함하고, 이들 방법 중 1가지는 산 → 염기(acid-to-base) 제자리 응집을 포함한다. 이러한 방법에서, 알루미늄 공급원 및 인 공급원을 포함하는 선택된 출발 물질을 조절 물질 전달, 온도 및 교반의 특정한 조건하에 조합한다. 출발 물질 및 공정 조건의 적절한 선택이 코팅 조성물 또는 복합재로 제형화될 때 생물활성 구성성분의 바람직한 조절 전달/방출을 제공하는 상기에서 언급된, 가공된 특징을 유도하기 위한 목적으로 형성된 화학적 구조 및 물질 함량을 갖는 AlP를 제조한다.

[0055] 상기에서 언급된 바와 같이, 2원 축합 방법에 의해 AlP를 형성하는 데에 유용한 알루미늄 공급원은 알루미늄 염, 예컨대 수산화알루미늄, 염화알루미늄, 질산알루미늄, 황산알루미늄 등을 포함한다. 바람직한 알루미늄 공급원은 수산화알루미늄 및 황산알루미늄을 포함한다. 축합에 의해 AlP를 형성하는 데에 유용한 인 공급원은 인산, 및 오르토포스페이트 또는 폴리포스페이트로서의 인의 염을 포함한다. 인의 적합한 공급원은 정화 및 변색된, 임의의 기원의 비료 등급 인산이다. 예를 들어, 대략 54%의 P_2O_5를 함유하는 시판 인산은 화학적으로 처리되고/거나 정수처리된 물로 희석되어 대략 20% 농도의 P_2를 초래할 수 있다.

[0056] 본원에 기재된 항미생물성 화학 조성물의 형성에 유용한 AlP는 2원 축합 방법의 적어도 5가지의 변법을 포함하는, 다수의 상이한 방법에 따라 제조될 수 있다. 하기의 선택된 제조 방법이 예로서 제공되었고, 구체적으로 기재된 방법 이외의 다른 제조 방법이 사용될 수 있음을 알아야 한다.

[0057] 실시예 1 - AlP의 2원 축합 형성 (염기 → 산 경로)

[0058] 예시 실시양태에서, AlP는 수산화알루미늄 ($Al(OH)_3$)을 인산 (H_3PO_4)에 첨가함으로써 제조된다. H_3PO_4는 $Al(OH)_3$과의 조합 전에 물로 희석되고, 첨가 전에, $Al(OH)_3$은 물로 습윤화되지 않지만, 습윤화된 $Al(OH)_3$이 사용될 수도 있다. 반응물을 가열 없이 실온에서 신속히 조합하여 백색 슬러리를 제조한다. 그러나, 필요에 따라, 반응물을 가열할 수도 있다. H_3PO_4는 시그마-알드리치(Sigma-Aldrich)에 의해 제공된 수중 85 중량%이고, $Al(OH)_3$은 시그마-알드리치에 의해 제공된 시약 등급이다. 구체적으로, 대략 57.3 g (0.5 몰)의 H_3PO_4를 물 50 g으로 희석시킨 후에, $Al(OH)_3$과 조합한다. 대략 39 g (0.5 몰)의 $Al(OH)_3$을 용액에 신속히 첨가하고 혼합물을 실온에서 서서히 교반하여 분말을 습윤화한다. AlP 축합 고체가 형성되고 고체 AlP 입자의 수중 분산물로서 존재한다. 이러한 특정 실시양태에서, AlP 입자는 주로 무정형 알루미늄 포스페이트 (AAlP)의 형태로 존재한다. $Al(OH)_3$을 첨가하기 전에 H_3PO_4를 희석시키는 것은 제한적으로 AAlP를 형성하는 데에 기여하는 것으로 생각되고, 예를 들어 결정질 형태가 거의 내지 전혀 생성되지 않는다. 현탁물을 여과하여 AlP 입자를 단리한다. 입자를 세척하고, 약 300℃ 미만, 바람직하게는 약 100℃ 내지 200℃일 수 있는 적절한 온도로 건조시킨다. 이렇게 형성된 AlP의 특징은 추가 열 처리, 템퍼링(tempering), 또는 소성화를 필요로 하지 않으면서, 예를 들어 항미생물성 코팅 조성물을 제형화하는 데에 사용되는 결합 중합체와 조합될 수 있다는 것이다. 상기에서 언급된 극한의 온도에서 AlP를 가열하는 것이 물을 제거하는 데에 유용할 수 있지만, 이는 또한 AlP가 무정형 형태에서 결정질 형태로 전환되는 것을 개시할 수 있다. 원치않는 구성성분을 제거하고/거나 최종 용도에 따른 성능 성질 또는 항미생물성 조성물에서의 특징에 영향을 미칠 수 있는 AlP의 물리적 특징에 영향을 주기 위해, AlP를 200℃ 이상, 예를 들어 300℃ 내지 800℃의 승온에 적용하는 것이 바람직할 수 있다. 결정질 형태의 AlP가 바람직하다면, 이렇게 형성된 AlP를 추가로 열 처리하거나 소성화시켜 목적하는 결정질 AlP를 제조할

수 있다.

[0059] AlP는 별법으로 $Al(OH)_3$을 H_3PO_4에 첨가함으로써 제조된다. 그러나, 상기에 기재된 예시 실시양태와 달리, H_3PO_4는 $Al(OH)_3$과의 조합 전에 희석되지 않는다. 그러나, 조합 전에, H_3PO_4를 가열한다. 또한, H_3PO_4와 조합 전에, $Al(OH)_3$을 물로 습윤화한다. 이러한 제조 방법의 특징은 반응물의 조합 후에 자유수의 첨가를 포함하지 않는다는 것이지만, 자유수의 첨가를 포함하는 상기 방법에 따라 AlP가 제조될 수도 있음을 알아야 한다. 예시 실시양태에서, H_3PO_4는 시그마-알드리치에 의해 제공된 수중 85 중량%이고, $Al(OH)_3$은 시그마-알드리치에 의해 제공된 시약 등급이다. 구체적으로, 대략 57.6 g의 H_3PO_4를 약 80℃의 온도로 가열한다. 대략 39 g의 $Al(OH)_3$을 약 2 g의 물로 습윤화하고, 습윤화된 $Al(OH)_3$을 급속 기계식 교반하에 H_3PO_4에 신속히 첨가한다. AALP 고체가 형성되고 도우형 볼(dough-like ball)로서 존재하며, 이것을 꺼내어 실온에서 보관한다. 이렇게 형성된 AlP의 특징은 목적하는 AlP를 단리하여 수득하기 위한 여과 및 세척 유형의 추가 처리가 필요하지 않다는 것이다. 상기에 기재된 예시 실시양태와 마찬가지로, 이러한 AlP를 건조시키고 항미생물성 화학 조성물의 형성에 유용한 바람직한 입자 크기로 형성한다.

[0060] 실시예 2 - AlP의 2원 축합 형성 (염기 → 산 경로)

[0061] 예시 실시양태에서, 상기에서 언급된, 가공된 물리적 성질 또는 특징, 예를 들어 다공도를 갖는 AlP는 수산화알루미늄 ($Al(OH)_3$)을 인산 (H_3PO_4)에 승온, 예를 들어 약 60℃에서 첨가하여 목적하는 AlP를 형성함으로써 제조된다. H_3PO_4는 $Al(OH)_3$과의 조합 전에 물로 희석되고, 첨가 전에, $Al(OH)_3$은 물과 조합되어 $Al(OH)_3$의 등급에 따라, 약 10 내지 25 중량%, 일부 경우에는 약 40 중량% 이하의 $Al(OH)_3$을 포함하는 슬러리를 형성한다. $Al(OH)_3$ 슬러리의 제조에서, 수산화알루미늄 분말의 분산을 용이하게 하기 위해, 예를 들어 특정 등급의 수산화알루미늄의 특정한 성질을 극복하기 위해 물을 가열할 수 있다. 가열된 슬러리를 승온에서 유지하고 산에 첨가할 수 있다. 높은 수준의 순도 및 작은 입자 크기 및 분포를 갖는 매우 고 등급의 수산화알루미늄으로, $Al(OH)_3$ 슬러리는 실온의 물에 첨가함으로써 제조될 수 있다.

[0062] $Al(OH)_3$ 슬러리를 축합 반응의 반응 속도를 조절하기 위해 희석된 H_3PO_4에 서서히 첨가한다. 예시 실시양태에서, $Al(OH)_3$ 슬러리를 조절된 방식으로, 예를 들어 적가 방식 등으로, H_3PO_4에 대략 10분 내지 약 1시간에 걸쳐서 첨가한다. 조합된 반응물을 대략 95℃의 온도로 가열하고, 반응물을 충분한 시간 동안, 전형적으로 약 3시간 동안 함께 혼합한다. 예시 실시양태에서, 반응은 본질적으로 폐쇄된 일정한 부피의 시스템에서 발생하고, 예를 들어 환류 응축기가 반응 시스템에서 일정한 용매 부피 (물)를 유지하기 위해 부착될 수 있다. 예시 실시양태에서, H_3PO_4는 시그마-알드리치에 의해 제공된 수중 85 중량%이고, $Al(OH)_3$은 시그마-알드리치에 의해 제공된 시약 등급이다. 구체적으로, 대략 864 g의 85% 희석 H_3PO_4를 사용하고, 585 g의 $Al(OH)_3$을 1,650 g의 탈이온수와 조합함으로써 슬러리를 형성한다. 조합된 반응물을 혼합 용기에 함유시키고 1,300 내지 1,500 rpm으로 혼합한다. 추가 물을 반응물에 첨가하고 조합물을 대략 30분 내지 약 3시간, 예를 들어 보다 전형적으로 후자의 시간 동안 혼합한다.

[0063] 필요에 따라, 모액 요소의 용해도를 감소시킴으로써, 반응의 결과에 대하여 더욱 증가한 조절을 제공하기 위해 적합한 화학 작용제를 반응물에 첨가할 수 있다. 예시 실시양태에서, 이러한 화학 작용제는 수산화칼슘 ($Ca(OH)_2$), 가용성 아민, 예컨대 디에틸렌트리아민 (DETA) 등일 수 있다.

[0064] AlP 축합 고체가 형성되고 고체 산성 AlP 입자의 수중 분산물로서 존재한다. 현탁물을 여과하여 산성 AlP 입자를 단리한다. 입자를 물로 1회 이상 세척한 후에, 다시 여과한다. 예시 실시양태에서, 초기 여과 후에, 입자를 침전물 부피의 대략 6배 부피의 물로 세척한 다음, 재여과한다. 연속적인 세척이 미반응 출발 물질 및 임의의 가용성 제조 부산물을 제거하는 작용을 한다. 재여과 후에, 산성 AlP 입자를 물의 첨가에 의해 재슬러리화하고, 하기 3가지의 상이한 기술 중 하나에 따라 추가 처리한다.

[0065] 제1 기술에서, 슬러리를 여과하여 산성 AlP 입자를 단리하고 입자를 가열한다. 예시 실시양태에서, AlP 입자를 약 24시간 동안 약 110℃의 온도로 가열하여 물을 제거하고, 산성 AlP 입자를 제조한다. 별법으로, AlP 입자를 약 12 내지 48시간 동안 약 250℃의 온도로 가열하여, 물 및 250℃ 미만에서 분해되는 부산물이 함유되지 않은 산성 AlP 입자를 제조한다. 또한, 어느 온도이든지, 특히 승온에서의 열 처리는 착물에 잔류할 수 있는 임의의 중간체의 전환을 완료시키는 구동력을 제공한다.

[0066] 제2 기술에서, 산성 AlP를 함유하는 슬러리를 적합한 중화제를 첨가하여 중화시킨다. 예시 실시양태에서, 중화제는 pH를 증가시키고 AP를 목적하는 pH, 전형적으로 5.5 내지 7.0으로 중화시키기에 충분한 양으로 슬러리에 첨가되는 수산화암모늄 (NH_4OH)이다. 생성 슬러리를 여과하고, 단리된 AP 입자를 가열한다. 한 예시 실시양태에서, AlP 입자를 약 24시간 동안 약 110℃의 온도로 가열하여 물을 제거하고, AlP 입자를 제조한다. 별법으로, AlP 입자를 약 24시간 동안 약 250℃의 온도로 가열하여, 물 및 다른 원치않는 화학 구성성분을 제거하여 AlP 입자를 제조하고 표면 흡착된 또는 벌크 흡수된 반응성 화학종, 예컨대 포스페이트 음이온 또는 인산수소 음이온의 최종 전환 또는 중화를 실시한다. 디에틸렌트리아민, 트리에틸렌테트라민, 2-아미노-2-메틸-1-프로판올을 포함하나, 이들로 제한되지는 않는 임의의 반응성 아민이 이러한 전환 또는 중화 단계를 위해 사용될 수 있다.

[0067] 제3 기술에서, 산성 AlP를 함유하는 슬러리를 적합한 중화제를 첨가하여 중화시킨다. 예시 실시양태에서, 중화제는 pH를 증가시키고 산성 AlP를 중화시키기에 충분한 양으로 슬러리에 첨가되는 수산화칼슘 ($Ca(OH)_2$)이다. 생성 슬러리를 여과하고, 단리된 AlP 입자를 가열한다. 한 예시 실시양태에서, AlP 입자를 약 24시간 동안 약 110℃의 온도로 가열하여 물을 제거하고, AlP 입자를 제조한다. 별법으로, AlP 입자를 약 24시간 동안 약 250℃의 온도로 가열하여, 물 및 다른 원치않는 화학 구성성분을 제거하고 AlP 입자를 제조한다. 바륨 및 마그네슘과 같은 2가 양이온의 다른 수산화물 화합물이 중화 또는 pH 조정을 실시하기 위해 칼슘 대신에 사용될 수 있다.

[0068] 상기의 실시예 1에서 기재된 바와 같이, 실시예 2에 기재된 방법에 따라 제조된 AlP는 AAlP를 포함한다. 그러나, 결정질 AlP 및/또는 AAlP 및 결정질 AlP의 조합이, 예를 들어 3시간 미만의 시간 동안 90℃ 이상의 온도에서 축합 반응을 진행함으로써, 기재된 방법에 따라 제조될 수 있음을 알아야 한다. 반응 혼합물을 약 45 내지 90℃, 바람직하게는 약 60 내지 70℃에서 유지하는 것은 결정질 및 무정형 형태의 조합인 AlP를 제조할 것이다. 약 45℃ 미만의 온도에서 반응을 진행하는 것은 주로 무정형 형태의 AlP를 제조할 것이다.

[0069] 실시예 3 - AlP의 2원 축합 형성 (산 → 염기 경로)

[0070] 첨가 순서를 변화시키는 것은 축합 반응의 촉매작용 특성을 변화시키는데, 즉 산을 염기성 슬러리에 첨가하는 것은 지연된 국부적인 pH 변화를 초래하고 반응이 주로 염기 촉매작용에 의한 것임이 발견되었다. AlP 입자가 지연 형성되고 용액의 국부 영역에서 보다 작다. 형성된 입자는 산 촉매작용에 의해 형성된 입자보다 더 큰 표면적을 갖는 경향이 있고, 덜 응집되고 집합된다. 예시 실시양태에서, 실시예 2에서의 첨가 순서가 역전되는데, 즉 필요한 양의 인산을 수산화알루미늄 슬러리에 서서히 첨가한다. 슬러리는 실시예 2에 기재된 바와 같이 제조한다. 인산을 대략 30분 내지 1시간에 걸쳐서 슬러리에 서서히 첨가하고, 생성 혼합물을 기계식 교반하고 적어도 3시간 동안 약 95℃로 가열한다. AlP 입자를 실시예 2에 기재된 바와 같이, 단리하고 정제한 다음 건조시킨다.

[0071] 직전에 기재된 산 → 염기 경로 이외에도, 이러한 산 → 염기 경로가, 먼저 특정 양의 수산화알루미늄을 인산에 용해시킨 후에, 산 용액을 슬러리에 첨가함으로써 더욱 향상될 수 있음이 발견되었다. 예시 실시양태에서, 수산화알루미늄의 일정량, 예를 들어 수산화알루미늄의 용해도 한계 이하의 양을 별도로 인산에 용해시킨다. 예시 실시양태에서, AlP는 2단계 공정에 따라 제조된다. 제1 단계에서, 수산화알루미늄의 일부, 전형적으로 화학량론적 양의 1/3을 먼저 인산에 용해시켜 산성 AlP 용액을 형성한다. 상기 산성 AlP 용액은 목적하는 1:1의 P 대 Al 비율을 갖는 생성물을 위해 반응의 화학량론을 만족시키는 데에 필요한 모든 인산 및 포스페이트를 함유한다. 제2 단계에서, 산성 AlP 용액을 화학량론을 위해 필요한 나머지 양의 수산화알루미늄을 함유하는 슬러리에 후속 첨가한다. 조합물은 주위 온도에서 반응을 진행하여 고체 산성 AlP 입자의 수중 분산물을 포함하는 AlP 축합 고체를 형성한다. 별법으로, 반응은 반응 효율 및 생성물이 형성되는 반응 속도 조절을 위해 바람직한, 예를 들어 약 95℃의 승온 조건에서 발생할 수 있다. 이러한 2단계 접근법의 장점은 반응을 위해 필요한 수산화알루미늄의 일부가 용해되고 예비반응한 후에, 산 용액이 슬러리에 첨가됨으로써, 점성이 낮고 보다 약한 교반을 필요로 하는 후속 불균일 반응을 제공하여, 보다 완전한 축합을 보장한다는 것이다.

[0072] 상기의 실시예 2에서 기재된 방법과 마찬가지로, 이러한 산 → 염기 반응 경로는 바람직하게는 일정한 부피 조건하에서 수행되는 것이다. 현탁물을 여과하여 산성 AlP 입자를 단리한다. 입자를 물로 1회 이상 세척한 후에, 다시 여과한다. 예시 실시양태에서, 초기 여과 후에, 입자를 침전물 부피의 대략 6배 부피의 물로 세척한 다음, 재여과한다. 바람직한 실시양태에서, 여과하고 세척하는 순서이고, 이를 목적하는 수준의 순도를 달성하는 임의의 횟수만큼 반복할 수 있다. 그 후에, 그에 따라 세척된 AlP 입자를 여과하고 약 24시간 동안 대략

110℃의 온도에서 건조시켜 산성 AlP 입자를 제공할 수 있다.

[0073] 별법으로, 재세척한 후에, AlP 입자를 재슬러리화한 다음, 적합한 중화제, 예를 들어 상기에 기재된 것들을 첨가함으로써 중화시킬 수 있다. 예시 실시양태에서, 충분한 양의 수산화암모늄 (NH_4OH)을 재슬러리화된 AP에 첨가하고, 생성 혼합물을 여과하여 AlP 입자를 단리하고, 입자를 가열한다. 예시 실시양태에서, AlP 입자를 약 24시간 동안 약 110℃의 온도로 가열하여 물을 제거하고, 고체 AAlP 입자를 제조한다. 또한, 상기에 기재된 바와 같이, 본원에 기재된 방법이 또한, 예를 들어 약 90℃ 초과의 온도에서 반응을 진행함으로써 결정질 AlP 또는 AAlP 및 결정질 AlP의 조합을 제조하는 데에도 사용될 수 있음을 알아야 한다.

[0074] 실시예 4 - AlP의 2원 축합 형성 (염기 → 산 제자리 응집)

[0075] 예시 실시양태에서, AlP는, 예를 들어 상기의 실시예 1 및 2에서 기재된 방식으로 수산화알루미늄 ($Al(OH)_3$)을 인산 (H_3PO_4)에 첨가하여 목적하는 AlP를 형성함으로써 제조된다. 그러나, 실시예 1 및 2와 달리, 반응이 개방 시스템에서 발생하고, 여기서 반응 시스템은 용매 물이 계속해서 증발되는 것을 허용하도록 개방된 상태가 되어, 시간의 경과에 따라 반응 시스템의 농도를 증가시키고 그의 pH를 감소시킨다. 축합 반응 공정 동안에 주기적인 간격을 두고, 물의 수준이 초기 부피로 보충된다. 그 후에, 반응 슬러리를 추가로 50 g의 물로 희석시키고 30분 동안 교반하여 반응 슬러리에서의 AlP 입자의 분산을 더욱 용이하게 한다. 그 후에, 슬러리를 여과하고, 침전물 부피의 대략 6배 부피의 물로 세척한 다음, 다시 여과한다. 이러한 여과-세척-여과 사이클을 목적하는 순도 수준이 달성될 때까지 반복할 수 있다. 통상적으로 1 내지 3 사이클이 미반응 출발 물질 및 원치 않는 반응 부산물을 제거하는 데에 충분하다.

[0076] 부피를 기재된 바와 같이 다르게 함으로써, 시스템 농도 및 pH에 있어서의 그에 따른 변화가 용액 중 AlP "올리고머"의 이미 형성되었고 집합되어 있는 AlP 입자 상으로의 순차적인 침전을 초래함이 발견되었다. AlP 올리고머의 이미 형성되었고 집합되어 있는 AlP 입자 상으로의 이러한 순차적인 침전은 기존의 AlP 응집물 및 입자의 표면 세공을 밀봉하는, 예를 들어 제자리 입자 층상화를 초래하는 작용을 함으로써, 그러한 AlP 응집물의 표면 다공도를 감소시키고 흡유성과 같은 관련 성질을 감소시킨다. 예시 실시양태에서, AlP 올리고머는 AAlP이고 이미 형성된 AlP 입자도 AAlP이다.

[0077] 상기에서 언급된 바와 같이, 축합 동안에 물의 수준을 순환시키는 것은 $Al(OH)_3$의 농도에 비례하여 pH의 변화를 초래한다. 부피가 감소하면, $Al(OH)_3$의 보다 높은 농도로 인해 pH가 증가하고 용해도가 감소하여 AlP 올리고머의 집합을 허용한다. $Ca(OH)_2$를 축합 매체에 첨가하는 것 또한 pH에 있어서 유사한 변화를 일으켜, AlP의 침전 및 기존의 AlP 입자의 후속 코팅을 초래할 수 있다. 이러한 공정은 또한 AlP 입자 표면 상에 흡착되었거나 펜던트(pendant) 요소로서 결합된 나머지 산 포스페이트 기의 반대 이온으로서 알칼리 토금속 양이온을 혼입할 것이다.

[0078] 축합 고체가 형성되고 고체 산성-코팅된 AAlP 입자의 수중 분산물로서 존재한다. 현탁물을 여과하여 산성 코팅된 AlP 입자를 단리한다. 입자를 물로 1회 이상 세척한 후에, 다시 여과한다. 예시 실시양태에서, 초기 여과 후에 입자를 침전물 부피의 대략 6배 부피의 물로 세척한 다음, 재여과한다. 연속적인 세척이 미반응 출발 물질 및 임의의 제조 부산물을 제거한다. 재여과 후에, 산성-코팅된 AlP 입자를 물을 첨가하여 재슬러리화하고, 추가로 열 처리한다. 예시 실시양태에서, 슬러리를 여과하여 산성 코팅된 AlP 입자를 단리하고, 입자를 약 24시간 동안 약 110℃의 온도로 가열하여 물을 제거하고, 산성 코팅된 AlP 입자를 제조한다. 별법으로, 코팅된 AlP 입자를 약 12 내지 48시간 동안 약 250℃의 온도로 가열하여, 물 및 250℃ 미만에서 분해되는 임의의 부산물이 함유되지 않은 건조한 산성 코팅된 AP 입자를 제조한다. 또한, 상기에 기재된 바와 같이, 본원에 기재된 방법이 결정질 AlP, 또는 AAlP 및 결정질 AlP의 조합을 제조하는 데에도 사용될 수 있음을 알아야 한다.

[0079] 실시예 5 - AlP의 2원 축합 형성 (산 → 염기 제자리 응집)

[0080] 예시 실시양태에서, AlP는, 예를 들어 상기의 실시예 3에서 기재된 방식으로 인산 (H_3PO_4)을 수산화알루미늄 ($Al(OH)_3$)에 첨가하여 목적하는 AlP를 형성함으로써 제조된다. 그러나, 실시예 3과 달리, 반응이 개방 시스템에서 발생하고, 여기서 반응 시스템은 용매 물이 계속해서 증발되는 것을 허용하도록 개방된 상태가 되어, 시간의 경과에 따라 반응 시스템의 농도를 증가시키고 그의 pH를 감소시킨다. 축합 반응 공정 동안에 주기적인 간격을 두고, 물의 수준이 초기 부피로 보충된다. 그 후에, 반응 슬러리를 추가로 50 g의 물로 희석시키고 30분 동안 교반하여 반응 슬러리에서의 AlP 입자의 분산을 더욱 용이하게 한다. 그 후에, 슬러리를 여과하고, 침전

물 부피의 대략 6배 부피의 물로 세척한 다음, 다시 여과한다. 이러한 여과-세척-여과 사이클을 목적하는 순도 수준이 달성될 때까지 반복할 수 있다. 통상적으로 1 내지 3 사이클이 미반응 출발 물질 및 원치않는 반응 부산물을 제거하는 데에 충분하다.

[0081] 상기의 실시예 4에서 언급된 바와 같이, 부피를 반응 동안에 기재된 바와 같이 다르게 함으로써, 시스템 농도 및 pH에 있어서의 그에 따른 변화가 용액 중 AlP "올리고머"의 이미 형성되었고 집합되어 있는 AlP 입자 상으로의 순차적인 침전을 초래함이 발견되었다. AlP 올리고머의 이미 형성되었고 집합되어 있는 AlP 입자 상으로의 이러한 순차적인 침전은 기존의 AlP 응집물 및 입자의 표면 세공을 밀봉하는, 예를 들어 제자리 입자 층상화를 초래하는 작용을 함으로써, 그러한 AlP 응집물의 표면 다공도를 감소시키고 흡유성과 같은 관련 성질을 감소시킨다. 예시 실시양태에서, AP 올리고머는 AAlP이고 이미 형성된 AlP 입자도 AAlP이다. 추가로, 상기에 기재된 바와 같이, 본원에 기재된 방법이 결정질 AlP, 또는 AAlP 및 결정질 AlP의 조합을 제조하는 데에도 사용될 수 있음을 알아야 한다.

[0082] 실시예 6 - 생물활성물-AlP 착물의 형성 (물리적 혼입)

[0083] 예를 들어 실시예 1 내지 5에서 상술된 바와 같이, 2원 축합물로서 제조된 AlP를 34 중량%의 슬러리로서 구성하여, 적절한 농도의 질산은 용액과 혼합한다. 후자의 용액은 1.0% 및 10%의 은-AlP 슬러리 용액이 생성되도록 제조된다. 조합된 슬러리를 대략 5분 동안 혼합한 후에, 분무 건조기에서 질소하에 원자화하고, 약 180℃ (유입) 내지 약 79℃ (배출) 범위의 온도에서 건조시킨다. 고체 분말을 수집하여 분석한다. 생성 분말은, 생물활성 물질이 AlP 중합체에 물리적으로 혼입, 망상화, 캡슐화 또는 뒤얽혀 있는 생물활성물-AlP 착물이다.

[0084] 예를 들어 실시예 1 내지 5에서 상술된 바와 같이, 2원 축합물로서 제조된 AlP를 별법으로 34 중량%의 슬러리로서 구성하여, 적절한 농도의 질산은 용액과 혼합한다. 교반 후에, 조합된 슬러리를 여과하고 40 내지 60℃의 온도에서 온수로 1회 세척한다. 여과물을 대략 12시간 동안 대략 110℃에서 건조시키고, 여러 분량으로 나누어, 각각을 대략 24시간 동안 대략 250℃에서 열 처리한다. 수율은 열 처리 온도와 상관없이 동일하고, 생성 분말은 생물활성 물질이 AlP 중합체에 물리적으로 혼입, 망상화, 캡슐화 또는 뒤얽혀 있는 생물활성물-AlP 착물이다.

[0085] 실시예 7 - 생물활성물-AlP 착물의 형성 (화학적 결합)

[0086] AlP를, 적절한 농도의 질산은 용액이 합쳐지는 인산 및 수산화알루미늄과 동시에 조합되는 것을 제외하고는, 상기의 실시예 1 내지 5에서 기재된 2원 축합 경로에 의해 제조한다. 생성 현탁물은 용액 중에 생물활성물-AlP 착물 축합물을 포함하고, 여기서 은 이온 형태의 생물활성 물질은 AlP 중합체와 화학적으로 결합하는데, 예를 들어 AlP 중합체 백본에 혼입된다. 현탁물을 상기에 기재된 방식으로 여과하여 생물활성물-AlP 착물 입자를 단리한다. 입자를 세척하고 상기에 기재된 실시예에서 기재된 온도에서 건조시켜, 바람직한 가공된 물리적 성질 또는 특징, 예를 들어 다공도를 제공한다.

[0087] 이러한 예시 방법에서, 화학 반응은 무정형 알루미늄 오르토포스페이트 또는 알루미늄 오르토포스페이트 ($Al_2(HPO_4)_3$ 또는 $Al(H_2PO_4)_3$)의 형성을 초래한다. 반응은 두 성분의 혼합물을 통해 (별도로 AlP를 형성할 경우), 또는 세 성분의 혼합물을 통해 (직접적으로 생물활성물-AlP 착물을 형성할 경우) 수행된다. 시약을 교반 장치가 설치된 반응기에 투입하고, 단시간 동안, 예를 들어 약 10분 미만의 시간 동안 반응시킨다.

[0088] 생성물의 결과에 영향을 미치는 2원 합성 방법에 의한 AlP의 형성에 있어서의 변수는 (a) 사용되는 ATH의 유형; (b) 반응 슬러리에 ATH를 분산시키는 방법 및 분산을 수행하는 온도; (c) 반응 슬러리 중의 ATH의 농도; (d) ATH 슬러리를 인산과 조합 (첨가)하는 순서 및 속도; 즉 산 → 염기 (A → B) 또는 염기 → 산 (B → A); (e) 반응 슬러리의 농도; (f) 축합 반응이 진행되는 온도 (예를 들어, 실온 또는 승온, 예컨대 95℃); (f) 일정 온도에서 반응의 지속기간 (시간) (예를 들어, 30분 또는 4시간 이하); (g) 교반 유형 (예를 들어, 단순 혼합 또는 분산); 및 (h) 반응 후속 처리, 예컨대 여과 후에 세척 및 축합물의 건조 분말로의 건조; 또는 용매의 부분 증발에 의한 (pH 조정과 함께 또는 pH 조정 없이) 축합물 슬러리의 겔 또는 페이스트로의 농축을 포함할 수 있다.

[0089] 사용되는 ATH의 유형과 관련하여, 2원 합성 방법에 의해 제조된 AlP의 물리적 형태가 출발 물질로서 사용되는 ATH의 특성, 및 반응속도를 조절하는 반응 조건에 좌우됨이 발견되었다. 개괄적으로 2가지 유형의 ATH가 이용가능하다; 무정형 및 결정질. 결정질 ATH는 다양한 특정 결정질 형태로 광물 조성물에 존재할 수 있다. 이들 유형 중 일부는 포스페이트 축합 반응을 진행시키기 위해 열의 형태로 상당한 에너지 투입 및 교반을 필요로 함이 발견되었다. 결정질 ATH를 사용하여 제조된 그에 따른 AlP 생성물 역시 전형적으로 결정질이다 (여러 형태

중 어느 하나가 가능한 구조임).

[0090] 무정형 ATH의 사용은 신속한 실온 반응 반응속도론을 허용하고, 그로부터 형성된 그에 따른 AlP 역시 실질적으로 항상 무정형이다. 바람직한 은 기능성을 보존하기 위해 (항미생물제로서 은을 사용할 경우), 가능한 최저 온도에서 반응을 진행시키는 것이 유용함이 발견되었다. 무정형 ATH가 이러한 용도에 적합함이 발견되었다. 또한, 보통의 반응성의 결정질 ATH (DSC에 의해, 340℃ 주위에서 흡열성 전이되는 반응성이 낮은 ATH 물질과 달리 310℃ 주위에서 흡열성 전이되는 것으로 특징화됨)는 실온에서 인산과 축합될 때, 약 50%의 무정형 함량 (은-알루미늄-포스페이트 요소를 함유함) 및 약 50%의 미반응 ATH로 구성된 AlP를 생성함이 발견되었다. 이는 실제로 전형적인 결정질 ATH를 사용하고 실온에서 인산과 조합하고 전형적으로 10% 미만의 전환이 발생하는 축합을 허용할 때 검출되는 것보다 더 높은 수준의 무정형 전환이다. 이렇게 형성된 AlP는 무정형이고, 그의 조성물은 포스페이트를 표면 코팅하는 ATH인 것으로 생각된다. 본원에 기재된 화학법에서 보다 높은 수준의 무정형 AlP 전환은 표면 반응을 촉진하고/거나 결정화 과정을 억제하는 (그에 따라 형성된 AlP는 무정형을 유지함) 다른 성분의 존재 때문이다. 상기 조성물이 유효 수준의 항미생물성 활성 및 광 안정성을 제공함이 시험에서 발견되었다.

[0091] 생물활성물-AlP 착물, 예를 들어 Ag-AlP의 형성과 관련있는 추가 변수는 하기와 같은 생물활성제 (예를 들어, 질산은과 같은 은 공급원)의 도입 지점을 포함할 수 있다: (a) 축합 전의 ATH 슬러리 (ATH + AgX + 물); (b) 축합 전의 인산; (c) 용액으로서 혼합을 시작할 때의 혼합된 축합물; 및 (d) 용액으로서 혼합이 종료될 때의 축합물. 2원 축합 방법의 상황에서 생물활성제의 도입 지점 변수가 상기에서 논의되었지만, 이러한 변수는 본원에 기재된 생물활성물-AlP 착물의 나머지 제조 방법에도 마찬가지로 적용됨을 알아야 한다.

[0092] 침전 제조 방법

[0093] AlP는 적합한 염, 예컨대 수산화알루미늄, 수산화마그네슘, 수산화칼슘, 황산알루미늄 등을 염의 완전한 용해를 달성하는 몰량으로 인산에 용해시킴으로써 제조된 포스페이트 착물이다. 포스페이트 착물은 알칼리성 용액 또는 염기, 예컨대 수산화나트륨, 수산화칼륨, 수산화암모늄, 알루민산나트륨, 알루민산칼륨 등으로 중화시킴으로써 산 용액으로부터 침전된다. 그에 따라 침전된 고체의 조성은 금속 대 포스페이트 음이온의 비율에 좌우된다. 침전된 착물, 즉 AlP의 성질은 염을 산에 용해시키는 동안에 사용된 공정 파라미터 및 중화제의 선택 가능성, 온도, 반응물의 첨가 순서, 반응물의 첨가 속도, 및 교반 정도 및 지속기간을 포함하는 침전/중화 조건에 좌우된다.

[0094] AlP는 알루미늄 공급원 및 인 공급원을 포함하는 선택된 출발 물질을 조절 물질 전달, 온도, 교반 및 pH의 특정한 조건하에 조합함으로써 침전 생성물로서 제조된다. 출발 물질 및 공정 조건의 적절한 선택이 생물활성 구성성분의 바람직한 조절 전달/방출을 제공하는 상기에서 언급된, 가공된 물리적 성질 또는 특징, 예를 들어 다공도를 유도하기 위한 목적으로 형성된 화학적 구조 및 물질 함량을 갖는 AlP를 제조한다.

[0095] 침전에 의한 AlP의 형성에 유용한 알루미늄 공급원은 알루미늄 염, 예컨대 염화알루미늄, 질산알루미늄, 황산알루미늄 등을 포함한다. AlP의 형성에 유용한 알루미늄 공급원은 또한 알루미네이트 화합물, 예컨대 알루민산나트륨 등, 수산화알루미늄, 또는 금속 형태의 알루미늄을 포함한다. 침전에 의한 AlP의 형성에 유용한 인 공급원은 인산, 및 오르토포스페이트 또는 폴리포스페이트로서의 인의 염을 포함한다. 알칼리성 용액이 주성분 반응물의 pH를 조절하거나 그를 중화시키기 위해 사용된다. 예시 실시양태에서, 알칼리성 용액은 수산화암모늄, 수산화나트륨, 탄산나트륨, 및 이들의 조합을 포함할 수 있다. 예시 실시양태에서, 수산화나트륨이 알칼리성 용액으로서 사용된다. 유용한 알루미늄 공급원, 포스페이트 공급원, 및 알칼리성 공급원은 공개된 미국 특허 출원 2006/0045831 및 2008/0038556에 개시된 것들을 포함하고, 이들 출원은 각각 그 전문이 본원에 참조로 포함된다.

[0096] AlP는 상기에서 언급된 물질의 선택적 조합을 통해 제조될 수 있다. 하기의 선택된 제조 방법이 예로서 제공되었고, 구체적으로 기재된 방법 이외의 다른 제조 방법이 사용될 수도 있음을 알아야 한다. 하기에서 더욱 상세히 기재된 침전 경로에 따라 제조된 AlP는 무정형 AlP를 포함하지만, 본원에 기재된 AlP의 침전 제조 방법은 또한 특정한 바람직한 항미생물성 화학 조성물 성질에 따라, 결정질 AlP 또는 무정형 및 결정질 AlP의 조합을 제조하는 데에도 사용되거나 이들을 제조하도록 적합화될 수 있음을 알아야 한다.

[0097] 실시예 8 - AlP의 황산알루미늄 제조 방법

[0098] 예시 실시양태에서, 상기에서 언급된, 가공된 성질을 갖는 AlP는 미국 특허 7,951,309에 개시된 바와 같이 황산알루미늄, 인산 및 수산화나트륨을 조합함으로써 제조되고, 이 특허는 본원에 참조로 포함된다. 본 실시예에서

사용되는 공정 단계는 일반적으로: 주요 시약, 예컨대 인산의 희석 용액, 황산알루미늄의 희석 용액, 및 수산화나트륨 또는 수산화암모늄의 희석 용액을 제조하고; 공정 동안에 혼합물의 균질성을 유지하기 위해 슬로싱(sloshing) 시스템이 설치된 반응기에 상기 시약을 동시에 조절 첨가하고; 반응기에 시약을 첨가하는 동안에, 혼합물의 온도 및 pH (산성도) 및 반응 시간을 조절하는 것을 포함한다.

[0099] 본 실시예의 방법에서 주요 시약은 하기와 같이 제조될 수 있다. 인의 공급원은 정화 및 변색된 임의의 기원의 비료 등급 인산이다. 예를 들어, 대략 54%의 P_2O_5를 함유하는 시판 인산이 화학적으로 처리되고/거나 정수처리된 물로 희석되어 대략 20% 농도의 P_2O_5를 초래할 수 있다. 본 실시예의 방법에서 유용한 또 다른 시약은 알루미나 (수화된 알루미늄 산화물)와 진한 황산 (98% H_2SO_4) 사이의 반응에 의해 수득가능한 시판 황산알루미늄이고, 이것은 정화되고 대략 28% 농도의 Al_2O_3로 보관된다. 바람직한 반응속도를 갖는 반응을 위해, 황산알루미늄은 정수처리된 물로 대략 5%의 Al_2O_3로 희석된다.

[0100] 반응물의 중화는 상이한 농도로 상업적으로 구매할 수 있는 수산화나트륨 용액으로 수행된다. 대략 50% 농도의 NaOH를 구매하여 희석시킬 수 있다. 예를 들어, 반응의 제1기에서, 초기 시약이 혼합될 때, 수산화나트륨은 대략 20% 농도의 NaOH로 사용될 수 있다. 반응의 제2기에서, 생성물의 산성도를 미세 조정하기 위해, 대략 5%의 NaOH를 갖는 수산화나트륨 용액이 사용될 수 있다. 대체 중화제로서, 수산화암모늄 또는 탄산나트륨 (소다회)이 사용될 수 있다.

[0101] 본 실시예의 방법에서, 화학 반응은 무정형 알루미늄 오르토포스페이트 또는 알루미늄 오르토포스페이트 $(Al_2(HPO_4)_3$ 또는 $Al(H_2PO_4)_3)$의 형성을 초래한다. 반응은 3종의 시약, 즉 인산 용액, 황산알루미늄 용액, 및 수산화나트륨 용액의 혼합물을 통해 수행된다. 시약을, 전형적으로 슬로싱 시스템을 함유하는 반응기에 약 30분 동안 투입한다. 반응기에 시약을 첨가하는 동안에, 혼합물의 pH를 4 내지 4.5의 범위에서 조절하고, 반응 온도를 35℃ 내지 40℃에서 조절한다. 반응은 약 15분의 시약 혼합 후에 완료되었다. 이 기간 동안에, 더욱 희석된 수산화나트륨을 첨가하여 혼합물의 pH를 5로 조정할 수 있다. 본 실시예의 방법에서, 온도는 바람직하게는 대략 40℃ 미만에서 유지된다. 반응이 종료될 때, 형성된 현탁물은 약 0.8:1 내지 1.2:1의 P:Al 몰비를 함유하여야 한다.

[0102] AlP의 형성 후에, 약 6.0% 내지 10.0%의 고체를 함유하고, 약 45℃의 대략적인 최고 온도 및 약 1.15 내지 1.25 g/cm^3의 밀도를 갖는 현탁물을 분리를 위해 가공한다. 예시 실시양태에서, 현탁물을 통상의 필터 프레스(filter press)에 펌핑한다. 필터 프레스에서, 액체상 (때로는, "리큐어(liquor)"라 함)을 고체상 (때로는, "케이크(cake)"라 함)으로부터 분리한다. 대략 35% 내지 45%의 고체를 함유하는 습윤화된 케이크를 세척 사이클을 위해 필터에 유지한다. 기본적으로 황산나트륨의 진한 용액인, 여과된 농축물을 필터로부터 추출하여 추가 사용을 위해 보관한다. 필터 프레스가 분리 기술로서 기재되었지만, 다른 유형의 분리 기술이 사용될 수도 있음을 알아야 한다.

[0103] 예시 실시양태에서, 습윤화된 케이크의 세척을 필터 자체에서 다수의 공정 단계로 수행한다. 제1 세척 ("전치 세척")에서, 케이크를 오염시키는 여과 물질의 최대량을 제거한다. 세척 단계는 사전에 선택된 유량으로 케이크 위를 흐르는 정수처리된 물을 사용하여 수행한다. 또한 정수처리된 물을 사용하는 제2 세척 단계를 수행하여 오염물이 제거되지 않았다면, 추가로 제거할 수 있다. 약간 알칼리성인 용액을 사용하는 제3 세척 단계를 이용하여 케이크를 중화시키고 그의 pH를 7.0 정도로 유지할 수 있다. 케이크에 일정 시간 동안 압축 공기를 취입할 수 있다. 바람직하게는, 습윤화된 생성물의 고체 함량은 약 35% 내지 45%이다. 특정한 세척 기술 및 순서의 사용이 기재되었지만, 다른 유형의 세척 기술이 사용될 수도 있음을 알아야 한다.

[0104] 케이크 분산물은, 습윤화 및 세척되고, 대략 35%의 고체를 함유하는 필터 케이크가 컨베이어 벨트에 의해 프레스 필터로부터 추출되어 반응기/분산기로 전달되는 방식으로 가공될 수 있다. 케이크의 분산은 소듐 테트라피로포스페이트의 희석 용액 첨가의 보조를 받는다.

[0105] 분산 단계 후에, 생성물을 후속적으로, 약 30% 내지 50%의 고체 백분율을 갖는 AAlP "머드"가 건조 유닛으로 펌핑될 때 건조시킨다. 예시 실시양태에서, 물질로부터 물의 제거를 상기에 언급된 바와 같이 건조 설비, 예컨대 "터보 건조기" 유형에서, 열풍 스트림의 주입을 통해, 약 300℃ 미만의 온도, 바람직하게는 약 100℃ 내지 200℃의 온도에서 수행하여 바람직한 가공된 다공도를 달성한다. 특정한 건조 기술의 사용이 기재되었지만, 다른 유형의 건조 기술이 사용될 수도 있음을 알아야 한다.

[0106] 실시예 9 - AlP의 알루민산나트륨 제조 방법

[0107] 또 다른 예시 방법에서, AlP는 미국 특허 7,951,309에 개시된 바와 같이, 알루미늄 공급원으로서 알루민산나트륨을 사용하여 제조된다. 이러한 실시양태에서, AAlP는 인산과 수산화알루미늄 사이의 반응에 의해 제조된다. 이 방법은 알루민산나트륨을 사용하여 수행될 수 있는 중화 단계를 추가로 포함할 수 있다. 특정 실시양태에서, AlP의 제조 방법은 인산, 수산화알루미늄 및 알루민산나트륨을 반응시키는 것을 포함한다. 한 실시양태에서, 무정형 소듐 알루미늄 포스페이트의 제조 방법은 알루미늄 포스페이트와 알루민산나트륨의 반응을 포함한다.

[0108] 한 실시양태에서, 반응은 두 단계를 포함한다. 제1 단계에서, 인산을 산성 pH에서 수산화알루미늄과 반응시켜 알루미늄 포스페이트를 제조한다. 한 실시양태에서, AlP는 수용성 알루미늄 포스페이트로서 제조된다. 특정 실시양태에서, 수용성 AlP의 pH는 약 3.5 미만이다. 특정 실시양태에서, pH는 약 3, 2.5, 2, 1.5 또는 1이다. 특정 실시양태에서, AAlP는 보다 높은 pH에서 미세한 고체-액체 분산물로서 제조된다. 한 실시양태에서, pH는 약 3, 4, 5 또는 6이다.

[0109] 제2 단계에서, 제1 화학적 단계로부터의 산성 수성 알루미늄 포스페이트 용액 또는 분산물을 알루민산나트륨과 반응시킨다. 특정 실시양태에서, 알루민산나트륨은 약 10 초과의 pH에서 수용액으로서 사용된다. 한 실시양태에서, 알루민산나트륨 수용액의 pH는 약 11, 12 또는 13이다. 한 실시양태에서, 알루민산나트륨 수용액의 pH는 약 12 초과이다. AAlP는 고체 침전물로서 생성된다. 한 실시양태에서, 고체 알루미늄-소듐 포스페이트는 약 0.85의 P:Al 몰비 및 약 0.50의 Na:Al 몰비를 갖는다. 한 실시양태에서, 고체 AAlP는 약 1의 P:Al 몰비 및 약 0.76의 Na:Al 몰비를 갖는다. 특정 실시양태에서, 다른 제형 비율을 갖는 분자가 동일한 절차로 수득될 수 있다.

[0110] 한 실시양태에서, 고체 수산화알루미늄 수화물을 제1 화학적 단계에서 인산에 첨가한다. 또 다른 실시양태에서, 고체 수산화알루미늄 수화물을 정제된 액체 알루민산나트륨 용액에 첨가하여 콜로이드 용액을 형성한다. 또 다른 실시양태에서, 고체 수산화알루미늄 수화물을 고체 또는 수중 고체-액체 현탁물로서 제2 반응 단계에서 직접 첨가한다. 특정 실시양태에서, 반응은 단일 단계로 수행된다.

[0111] 본 실시예의 방법에 유용한 알루민산나트륨은 당업자에게 공지된 방법으로 수득가능한 것들을 포함한다. 예를 들어, 알루민산나트륨은 보크사이트(Bauxite) 광석으로부터의 알루미나 (Al_2O_3) 추출에 의한 바이엘(Bayer) 공정의 제1 단계로부터 생성되는 표준 화학 제품으로서 용액 형태로 제공될 수 있다 (종종, "정제 나트륨 귀액"이라 함). 상기 액체 알루민산나트륨 수용액을 주위 온도에서 포화시키고 수산화나트륨 (NaOH)으로 안정화한다. 그의 전형적인 조성은 하기와 같다: 알루민산나트륨 58 내지 65 질량% (25 내지 28 질량%의 Al_2O_3) 및 수산화나트륨 3.5 내지 5.5 질량% (2.5 내지 4 질량%의 유리 Na_2O). 특정 실시양태에서, 이것은 약 1.10 내지 2.20의 Na:Al 몰비 및 소량의 불순물 (보크사이트 공급원에 따라: Fe = 40 ppm, 중금속 = 20 ppm, 및 소량의 음이온, Cl^- 및 SO_4^{2-})을 갖는다. 특정 실시양태에서, 알루민산나트륨 수용액은 약 1.10, 1.15, 1.20, 1.25, 1.30, 1.35, 1.40, 1.45, 1.50, 1.55, 1.60, 1.65, 1.70, 1.75, 1.80, 1.85, 1.90, 1.95, 2.0, 2.05, 2.10, 2.15 또는 2.2의 Na:Al 몰비를 갖는다. 특정 실시양태에서, 용액의 색은 호박색이다. 특정 실시양태에서, 용액의 점도는 대략 100 cP이다. 특정 측면에서, 알루민산나트륨 용액은 연마 여과에 의해 정제된다. 특정 실시양태에서, 알루민산나트륨 용액은 고체 수산화알루미늄 및 수산화나트륨으로부터 재생된다.

[0112] 고체 수산화알루미늄 수화물은 당업자에게 공지된 방법으로 수득될 수 있다. 한 실시양태에서, 수산화알루미늄은 바이엘 공정에 의해 제조되는 공업용 화학물질이다. 고체 수산화알루미늄 수화물은 용액의 냉각을 통해 수행되는 침전에 의해 "정제 알루민산나트륨 귀액"으로부터 수득될 수 있다. 한 실시양태에서, 이렇게 제조된 알루민산나트륨은 낮은 수준의 불순물 및 다양한 습도를 갖는다 (양이온 약 70 ppm, 염소산염 약 0.85 질량% 및 황산염 약 0.60 질량% (이들 불순물은 "정제 알루민산나트륨 귀액"의 침전 수준에 의해 결정됨) 및 총 함수량, 수화도 및 습도 약 22.0 내지 23.5 질량%). 한 측면에서, 두 원료는 모두 보크사이트 공정처리기에 의해 대량 생산되는 (상품), 보크사이트 공정의 제1 및 제2 단계로부터의 표준 1차 공업용 제품이다.

[0113] 한 실시양태에서, 화학 반응은 알루미늄 소듐 포스페이트 ($Al(OH)_7Na_7(PO_4).1.7H_2O$)의 형성을 초래한다. 알루미늄 소듐 포스페이트의 형성 후에, 약 6% 내지 10%의 고체를 함유하고, 대략 45℃의 최고 온도 및 1.15 내지 1.25 g/cm^3 범위의 밀도를 갖는 현탁물을 통상의 필터 프레스로 펌핑한다.

[0114] 바람직한 실시양태에서, 침전 공정에 의해 제조되는 AlP는 알루민산나트륨을 사용하여 제조된다. 알루민산나트륨 공정이 AlP의 바람직한 특징에 대하여 향상된 수준의 조절을 제공하고, 이는 황산알루미늄 공정에서는 나타나지 않음이 발견되었다.

[0115] 실시예 10 - 생물활성물-AlP 착물의 형성 (물리적 혼입)

[0116] 상기의 실시예 8 및 9에서 기재된 침전 방법에 의해 제조된 AlP를 34 중량%의 슬러리로서 구성하여, 적절한 농도의 질산은 용액과 혼합한다. 후자의 용액은 1.0 중량% 및 10 중량%의 은-AlP 착물이 제조되고 슬러리 용액이 생성되도록 제조된다. 조합된 슬러리를 대략 5분 동안 혼합한 후에, 분무 건조기에서 질소하에 원자화하고, 약 180℃ (유입) 내지 약 79℃ (배출) 범위의 온도에서 건조시킨다. 고체 분말을 수집하여 분석한다. 생성 분말은, 생물활성 물질이 AlP 중합체에 물리적으로 혼입, 망상화, 캡슐화 또는 뒤얽혀 있는 생물활성물-AlP 착물이다.

[0117] 상기에 기재된 침전 방법에 의해 제조된 AlP를 별법으로 34 중량%의 슬러리로서 구성하여, 적절한 농도의 질산은 용액과 혼합한다. 교반 후에, 조합된 슬러리를 여과하고 40 내지 60℃의 온도에서 온수로 1회 세척한다. 여과물을 대략 12시간 동안 대략 110℃에서 건조시키고, 여러 분량으로 나누어, 각각 대략 24시간 동안 대략 250℃에서 열 처리한다. 수율은 열 처리 온도와 상관없이 동일하고, 생성 분말은 생물활성 물질이 AlP 중합체에 물리적으로 혼입, 망상화, 캡슐화, 또는 뒤얽혀 있는 생물활성물-AlP 착물이다.

[0118] 실시예 11 - 생물활성물-AlP 착물의 형성 (화학적 결합)

[0119] AlP를, 적절한 농도의 질산은 용액을 산성 알루미늄 포스페이트 용액 (3:1의 P:Al 비율)과 조합한 후에, 적절한 양의 알루민산나트륨으로 중화시키는 것을 제외하고는, 상기의 실시예 8 및 9에서 기재된 침전 방법과 유사하게 제조한다. 생성 분산물은 은 이온 형태의 생물활성 물질이 AlP 중합체와 화학적으로 결합된, 예를 들어 AlP 중합체의 중합체 백본에 혼입된 생물활성물-AlP 착물을 포함한다. 분산물을 여과하여 생물활성물-AALP 착물 입자를 단리한다. 입자를 세척하고 상기에 기재된 온도에서 건조시켜, 바람직한 가공된 다공도를 제공한다.

[0120] 졸 겔 제조 방법

[0121] 졸-겔 방법에 의해 제조된 AlP는 콜로이드 현탁물 (졸)의 형성을 통한 분자 또는 이온 전구체로부터의 무기 분자 네트워크의 형성 및 연속적 액체상 (겔)으로 고체 네트워크를 형성하는 상기 졸의 겔화를 포함한다. 이러한 콜로이드를 합성하기 위한 전구체는 전형적으로 다양한 반응기에 의해 둘러싸인 금속 또는 준금속 요소를 포함한다. 달리 말하면, 졸 겔 방법에서, 단순 분자 또는 이온 전구체를 나노 크기의 입자로 전환시켜 콜로이드 현탁물 (졸)을 형성한다. 그 후에, 콜로이드 나노-입자를 3차원 액체 충전된 고체 네트워크 (겔)로 서로 결합시킨다. 겔로의 이러한 변형은 다수의 방법으로 개시될 수 있지만, 가장 편리한 접근법은 반응 용액의 pH를 변화시키는 것이다.

[0122] 고체로부터 액체를 제거하기 위해 사용되는 방법은 졸 겔의 성질에 영향을 미칠 것이다. 예를 들어, 초임계 건조는 건조된 고체에서의 3차원 구조를 유지할 것이고, 반면에 유체 증발 방법으로의 느린 건조는 네트워크 구조를 붕괴시켜 고밀도 물질을 형성한다.

[0123] 졸 겔 합성 방법을 통한 AlP 제조의 장점은 고순도 및/또는 고도 맞춤형 물질, 균일한 입자 크기 분포, 실질적으로 구형-형상의 응집물 입자, 나노 크기의 입자, 및 맞춤 가공된 조성물을 수득할 가능성을 초래하는 공정 다용성 및 단순성을 포함한다. 본원에 기재된 AlP는 실질적으로 구형의 응집물 입자를 포함하지만, 어느 정도 소량의 비-구형 입자가 의도치 않게 제조될 수 있고 생성된 항미생물성 화학 조성물에 존재할 수 있음을 알아야 한다.

[0124] 본원에서 사용된 용어 "겔"은 액체가 갇혀 있는, 결합된 거대 분자 덩어리 중합체 또는 응집물로 형성된 3차원 케이지(cage) 구조인 것으로 이해된다. 네트워크 구조는 전형적으로 코어 입자 사이의 약한 결합 및/또는 가역적 결합으로 이루어진다. 본원에서 사용된 용어 "졸"은 액체 중 고체의 콜로이드 분산물인 것으로 이해된다. 고체는 나노미터 크기의 평균 입자 크기를 갖는 알루미늄 포스페이트를 포함한다. 겔은 모든 액체를 에워싸고 있는 반-경질 덩어리의 분산상으로서 알루미늄 포스페이트 졸을 포함한다. 졸 겔 방법에 의해 제조된 생성물의 여과, 세척, 건조, 및 이들의 조합에 의한 후속 처리는 조절된 방식으로 콜로이드 고체의 응집을 유도하여 거대 고체 착물을 형성한다.

[0125] 일반적으로, 졸 겔 방법은 하기 공정 단계를 포함한다: (1) 예를 들어 나노미터 크기의 1차 입자를 형성하는 분자 전구체의 핵형성 또는 중합 또는 축합에 의한 졸 (콜로이드 분산물 또는 현탁물)의 형성; (2) 입자의 성장

또는 겔화; (3) 사슬을 형성하는 입자의 결합 및 이러한 사슬의 액체 매체를 통한 연장에 의한 증점된 겔의 형성; 및 (4) 졸 겔 물질의 액체 제거 처리에 의한 목적하는 고체 최종 생성물의 제공.

[0126] 예시 실시양태에서, 전구체 용액은 적합한 알루미늄 공급원을 인 공급원과 조합함으로써 제조된다. 적합한 알루미늄 공급원은 알루미늄 염 군, 예컨대 염화알루미늄, 질산알루미늄, 황산알루미늄 등으로부터 선택될 수 있다. 바람직한 알루미늄 공급원은 질산알루미늄이다. 졸 겔 방법에 의한 AAlP의 형성에 유용한 인 공급원은 인산, 및 오르토포스페이트 또는 폴리포스페이트로서의 인의 염을 포함한다. 인 공급원은 정화 및 변색된, 임의의 기원으로부터의 비료 등급 인산이다.

[0127] 전구체 용액의 주요 성분을 수성 환경에서 겔화제와 함께 조합하여, 용액으로 고체 알루미늄 포스페이트 입자의 콜로이드 분산물을 제조한다. 예시 실시양태에서, 전구체 용액은 질산알루미늄을 인산 (85 중량%)과 물의 존재하에 조합함으로써 형성된다. 물은 질산알루미늄, 인산 중 하나 이상에, 또는 성분과 상관없이 첨가되는 물로서 존재할 수 있다.

[0128] 전구체 성분을 조합한 후에, 생성 시스템을 교반하고 적합한 알칼리성 성분을 교반 용액에 첨가한다. 이러한 목적에 유용한 알칼리성 성분은 시스템의 pH를 변화시키는 데에, 예를 들어 산성 시스템의 pH를 증가시키는 데에 통상 사용되는 것들을 포함하고, 예시 실시양태에서 이러한 성분은 수산화암모늄이다. 수산화암모늄의 존재는 pH를 증가시키고 핵형성 및 축합 과정을 유도하여 콜로이드 분산물 또는 졸을 형성한다. 핵형성제의 농도에 따라, 상기 단계는 중간 단계 또는 최종 단계일 수 있다. 핵형성제의 추가 첨가는 1차 알루미늄 포스페이트 입자의 결합을 초래하여 겔을 형성하고, 예를 들어 겔화를 초래하고, 추가로 겔 구조로 결합되는 콜로이드 입자를 초래하여 졸 겔을 형성한다.

[0129] 예시 실시양태에서, 겔화 전에 콜로이드 분산물을 단리하도록 졸 겔 방법을 조절하는 것이 바람직할 수 있다. 이는 완전한 겔화가 아닌, 콜로이드 분산만이 발생하도록 (즉, 졸의 형성) 반응 조건을 조절함으로써 수행될 수 있다. 이러한 방식으로 방법을 조절하는 것은 특정한 제조 장점을 제공하고/거나 최종 생성물을 처리하는 것과 관련하여 특정 장점을 제공할 수 있다. 이러한 방법으로부터의 콜로이드 분산물을 여과하여 고체를 회수한 후에, 하기에 기재된 바와 같이 열 처리하고/거나 세척할 수 있다.

[0130] 예시 실시양태에서, 인산, 질산알루미늄, 및/또는 수산화암모늄을 가열한 후에 서로 조합할 수 있거나, 또는 조합한 후에, 예를 들어 교반하는 동안에 가열할 수 있다. 또한, 존재하는 물의 양 및/또는 수산화암모늄의 첨가 속도는 AAlP의 바람직한 수율을 갖는 목적하는 반응 생성물을 제조하도록 조정될 수 있다.

[0131] 예시 실시양태에서, 산 용액에 첨가되는 수산화암모늄 (NH_4OH)의 양은 콜로이드 알루미늄 포스페이트 입자의 형성을 개시하기 위해 산 시스템을 중화시키기에 충분하고, 겔화를 위해 질산암모늄 (NH_4NO_3)을 형성하는 화학량론적 양을 초과한다. 이러한 범위는 NH_4NO_3을 형성하기 위해 필요한 NH_4OH의 화학량론적 양 (1.0 화학량론) 내지 약 3.0 화학량론, 바람직하게는 약 1.1 내지 2.0, 보다 바람직하게는 약 1.2 내지 1.5이다.

[0132] 첨가 순서 (즉, 염기 용액을 산 전구체 용액에 첨가 또는 그 반대)는 겔화 속도 및 겔화 정도를 조절하는 것으로 확인되었다. 염기가 상기에 명시된 화학량론적 농도 범위 (1.0 내지 3.0)로 교반 전구체 용액에 첨가될 때, 실질적으로 즉각적인 겔화가 발생한다. 역전된 첨가 순서, 즉 전구체 용액을 염기 용액에 첨가하는 것은 콜로이드 분산부터 완전한 겔화까지, 성장 정도에 대한 조절을 제공함이 발견되었다. 하기에서 논의된 바와 같이, 입자 형태는 첨가 방법에 의해 조절될 수 있음이 또한 발견되었다.

[0133] 1.1 화학량론비를 초과하는 암모니아의 농도가 생성 착물에서의 미반응 알루미늄을 최소화하는 데에 유용함이 확인되었다. 방청 안료로서의 최종 용도에 따른 적용을 위해서는, 물과 접촉할 때 착물로부터 포스페이트의 방출 속도가 200 내지 400 ppm의 범위인 것이 바람직하다. 반응에서 암모니아 수준이 약 1.2 내지 3 화학량론비일 때, 하기에 기재된 바와 같이 고체를 철저히 세척하고/거나 열 처리하여 가용성 부산물을 제거한 후에 포스페이트 음이온 용리가 목표 범위에 있는 것으로 시험에 의해 측정되었다.

[0134] 예시 방법에서, 졸 겔을 이어서 가열, 세척 및/또는 사이징(sizing)을 포함할 수 있는 겔화 후속 처리에 적용한다. 예시 실시양태에서, 형성된 졸 겔 분말을 액체 구성성분을 제거함으로써 분산물 또는 겔의 붕괴에 의해 단리한다. 다양한 유형의 겔이 졸 겔로부터 형성될 수 있다; 예컨대 큰 다공도 및 표면적 (150 - 1,000 m^2/g)의 고체 형태를 생성하는 졸 겔의 미방해 건조에 의해 형성된 고체인 크세로겔, 초임계 건조 (예를 들어, 동결 건조)에 의해 형성된 고체인 에어로겔, 물에 분산된 불수용성 콜로이드 중합체 입자인 히드로겔, 및 고체 매트릭스에 갇혀 있는 액체 유기상을 포함하는 무정형, 비-유리질 고체인 오르가노겔.

[0135] 졸 겔은 모든 액체를 에워싸고 있는 덩어리로서 고체 분산상을 형성하는 다양한 pH 의존성 (아미노, 물, 포스페이트) 결합을 통해 연결된 고체 $AlPO_4$로 이루어지고, 상기 액체는 물로 이루어지고 염을 용해시킨다. 겔을 약 100℃ 이상의 온도로 가열하면 물 및 임의의 암모니아가 증발되고 덩어리가 알루미늄 포스페이트 ($AlPO_4$) 및 질산암모늄 (NH_4NO_3)으로 이루어진 고체로 붕괴된다. 겔 또는 붕괴된 겔 고체를 약 215℃ 이상의 온도로 가열하면 질산암모늄 (NH_4NO_3)이 열 분해되어, 분말 생성물로부터 제거된다. 약 215℃ 이상의 온도로 가열하는 것은 pH의 감소를 유도하고, 이는 대부분 PO 기 상의 치환기로서, 질산암모늄 (NH_4NO_3)의 열 분해 후에 잔류하는 잔류 아미노기가 또한 열 분해되고 수소 원자에 의해 대체되어 착물이 산성이 되었음을 의미한다. 이러한 처리로부터 생성된 고체 생성물은 분석을 통해 약 240 ppm의 포스페이트 방출 속도 및 125 m^2/g 초과의 표면적을 갖는 순수한 AAIP인 것으로 확인되었다.

[0136] 따라서, 겔화 후속 열 처리는 졸 겔을 약 250℃ 이상의 비교적 고온으로, 물의 증발, 덩어리의 붕괴, 및 질산암모늄 (NH_4NO_3)의 열 분해를 달성하는 충분한 시간 동안 가열하는 단일 단계를 포함할 수 있다. 예시 실시양태에서, 이는 약 250℃에서 대략 12 내지 72시간 동안 수행될 수 있다. 이러한 열 처리로부터 생성되는 생성물은 실질적으로 알루미늄 포스페이트이고, 즉 인산암모늄 또는 질산암모늄은 존재한다 하더라도, 매우 소량이다.

[0137] 별법으로, 겔화 후속 열 처리는 졸 겔을 약 100℃ 이상 내지 150℃의 보다 저온에서 물의 증발을 달성하는 충분한 시간 동안 가열하는 단일 단계를 포함할 수 있다. 예시 실시양태에서, 이는 약 110℃에서 대략 1 내지 24시간 동안 수행될 수 있다. 이러한 가열 또는 건조 처리로부터 생성되는 생성물은 AAIP 및 인산암모늄 및 질산암모늄이다.

[0138] 이러한 건조 단계 후에, 약 215 내지 300℃의 온도에서의 열 처리 단계가 이어질 수 있다. 바람직한 실시양태에서, 건조 단계는 약 110℃에서 약 24시간 동안이고, 열 처리는 약 250℃에서 최대 1 내지 3일 (16 내지 72시간)이다. 생성 AAIP는 약 5 내지 20 중량%의 수분 함량 및 바람직한 가공된 다공도를 갖는다. 열 처리된 물질의 pH는 착물을 재분산시켜 수산화암모늄 용액으로 pH를 조정함으로써 조정할 수 있다. 그 후에, 생성 착물을 100 내지 110℃에서 건조시켜 물 및 암모니아를 제거한다.

[0139] 필요에 따라, 건조 또는 열 처리 전에, 졸 겔 물질을 여과하여 고체 입자를 용액으로부터 분리할 수 있고, 예를 들어 케이크 형태의 분리된 고체를 1 사이클 이상의 세척에 적용할 수 있다. 세척 사이클은 물을 사용하고 고체 알루미늄 포스페이트 입자에서 임의의 원치않는 용해물, 예를 들어 반응 부산물로서 형성된 질산암모늄 및 인산암모늄과 같은 암모늄 화합물을 제거하는 작용을 한다. 그 후에, 세척 샘플을 상기에 기재된 방식으로 건조 및/또는 열 처리하여, 추가로 물을 증발시키고/거나 세척된 알루미늄 포스페이트에 잔류하는 질산암모늄 및 인산암모늄을 열 분해시키고, 알루미늄 포스페이트 입자를 치밀화할 수 있다.

[0140] 필요에 따라, 졸 물질을 약 100℃에서 건조시켜 물을 증발시키고 덩어리를 붕괴시킬 수 있으며, 붕괴된 분말을 물로 세척하여 질산암모늄 (NH_4NO_3)을 제거함으로써, 부산물을 열 분해시키는 대신에 회수할 수 있다. 세척 및 건조된 덩어리를 약 215℃ 이상에서 열 처리하여 잔류 질산암모늄 (NH_4NO_3)을 열 분해시킴으로써, 실질적으로 순수한 AAIP를 제공할 수 있다.

[0141] AAIP만을 형성하기 위한 졸 겔 방법의 기본 화학법은 하기와 같이 제시된다:

[0142] 1. 전구체 용액 - 모든 성분의 조합

[0143] $Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O + H_3PO_4 + H_2O$

[0144] 2. 겔화제

[0145] $3NH_4OH + H_2O$

[0146] 3. 졸-겔 반응

[0147] $AlPO_4 + (NH_4)_3PO_4 + H_2O \rightarrow AlPO_4 + NH_4OH$

[0148] AAIP 졸 겔을 형성하는 반응: NH_4OH (수중 28% NH_3)가 첨가되면, 이것은 산 시스템을 중화시키고 불용성 $AlPO_4$의 형성을 유도하는데, Al^{+3}이 반응으로부터 생성되고 보다 많은 NH_4^{+1}이 NO_3^{-1}과 결합하도록 하여 가용성 NH_4NO_3을 형

성한다. NH_4OH의 농도 및 첨가 속도에 따라, $AlPO_4$의 콜로이드 입자가 형성될 것이다. 보다 많은 NH_3을 반응물에 첨가하는 것은 $AlPO_4$ 콜로이드 입자의 응집 및 궁극적으로 입자 간의 결합 형성을 허용하여 겔 구조를 형성한다.

[0149] 첨가되는 NH_3의 양은 pH를 조절하고 겔 브리지(bridge) 형성을 촉진하는 충분한 NH_3을 제공하기 위해, NH_4NO_3을 형성하기 위해 필요한 화학량론적 양보다 많아야 한다. 첨가되는 NH_3의 양, 첨가 속도, 및 농도에 따라, 겔은 물에 용해된 질산암모늄 (NH_4NO_3)을 캡슐화하는 3차원 케이지 구조를 형성하면서 결합된 $AlPO_4$ 고체 입자의 덩어리로 이루어질 것이다. 인산암모늄이 또한 중간체로서 존재할 수 있고, 반응 조건의 연장 (즉, 추가 가열에 의한)이 시스템에서 알루미늄과의 완전한 반응을 유도하여 알루미늄 포스페이트로 축합시킬 것이다.

[0150] 4. 여과 및 세척 - 가용성 암모늄 염을 제거하는 열적 정제를 보완하거나 대체하는 임의 단계.

[0151] 5. 탈수 및 건조 - 물을 증발시키고 졸 겔 구조를 붕괴시켜 치밀화된 고체를 형성하는 적어도 100℃ 이상에서의 건조.

[0152] $AlPO_4 + NH_4NO_3$

[0153] 6. 열적 정제 - 질산암모늄을 열 분해시키는 215 내지 250℃에서의 열 처리.

[0154] $AlPO_4$ (무정형 알루미늄 포스페이트)

[0155] 필요에 따라, 성분의 첨가 순서를 상기에 기재된 것과 다르게 할 수 있다. 예를 들어, 반응 시스템의 점도를 조절하고/거나 콜로이드 고체의 표면적에 영향을 주기 위해, 산 용액을 수산화암모늄 용액에 첨가할 수 있다. 성분의 첨가 순서에 있어서의 이러한 융통성은, 예를 들어 콜로이드 1차 입자의 현탁물의 형성에 유리한 겔화를 피하는 것이 바람직할 수 있는 확장된 제조 규모의 경우에 장점이 될 수 있다. 세척, 건조 및/또는 열 처리 후에 달성된 조성은 본질적으로 첨가 순서에 상관없이 화학적으로 동일하다. 그러나, 생성물 형태는 이러한 공정 파라미터의 영향을 받는다. 산을 염기에 첨가하는 것은 보다 높은 표면적 및 보다 큰 다공도를 초래한다. 본원에 기재된 졸 겔 방법은 AAlP로 본질적으로 이루어진 알루미늄 포스페이트 조성물을 제조한다.

[0156] 염기 → 산 순서는 신속한 pH 변화 및 졸 입자의 신속한 형성에 이어서, 신속한 겔화를 초래하여 겔 매트릭스에서 상호결합된 입자를 형성한다. 이는 분자 이동성을 감소시키고 임의의 추가 입자 성장 또는 형태 변화를 방지한다. 산을 염기에 첨가하는 경우에는, pH 변화가 지연되고 국부적으로 콜로이드 알루미늄 포스페이트 입자가 형성된다. 겔화가 발생하지 않으면 시스템 이동성이 계속해서 경쟁적 부반응을 허용하여 (질산암모늄 및 인산암모늄의 가용화 증가), 중간체 화학종이 잔류하도록 한다. 탈수 및 열적 분해가 발생할 때, 알루미늄 포스페이트의 소입자가 유리수 및 분해 생성물 (질산암모늄의 분해 생성물)의 존재하에 존재하여, 보다 큰 다공도의 응집된 알루미늄 포스페이트 소입자를 유도한다.

[0157] 생물활성물-AAlP 착물만을 형성하기 위한 졸 겔 방법 (예를 들어 질산은 형태의, 생물활성 물질을 질산알루미늄 및 수성 인산에 첨가하는 것을 포함함)의 기본 화학법은 하기와 같이 제시된다:

[0158] 1. 전구체 용액 - 모든 성분의 조합

[0159] $Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O + H_3PO_4 + H_2O + AgNO_3$

[0160] 2. 겔화제

[0161] $3NH_4OH + H_2O$

[0162] 3. 졸-겔 반응

[0163] $AgAlPO_4 + (NH_4)_3NO_3 + H_2O + NH_3$

[0164] 4. 여과 및 세척 - 가용성 암모늄 염을 제거하는 열적 정제를 보완하거나 대체하는 임의 단계.

[0165] 5. 탈수 및 건조 - 물을 증발시키고 졸 겔 구조를 붕괴시켜 치밀화된 고체를 형성하는 적어도 100℃ 이상에서의 건조.

[0166] $AgAlPO_4 + NH_4NO_3$

[0167] 6. 열적 정제 - 질산암모늄을 열 분해시키는 215 내지 250℃에서의 열 처리.

[0168] $AgAlPO_4$ (무정형 은 알루미늄 포스페이트)

[0169] 실시예 12 - 생물활성물-AlP 착물의 형성 (물리적 혼입)

[0170] 상기에 기재된 졸 겔 방법에 의해 제조된 AAlP를 34 중량%의 슬러리로서 구성하여, 적절한 농도의 질산은 용액과 혼합한다. 후자의 용액은 1.0% 및 10%의 은-AgAlP 착물이 생성되도록 제조된다. 조합된 슬러리를 대략 5분 동안 혼합한 후에, 분무 건조기에서 질소하에 원자화하고, 약 180℃ (유입) 내지 약 79℃ (배출) 범위의 온도에서 건조시킨다. 고체 분말을 수집하여 분석한다. 생성 분말은, 생물활성 물질이 AlP 중합체에 물리적으로 혼입, 망상화, 캡슐화 또는 뒤얽혀 있는 생물활성물-AlP 착물이다.

[0171] 졸 겔 방법에 의해 제조된 AAlP를 별법으로 34 중량%의 슬러리로서 구성하여, 적절한 농도의 질산은 용액과 혼합한다. 교반 후에, 조합된 슬러리를 여과하고 40 내지 60℃의 온도에서 온수로 1회 세척한다. 여과물을 대략 12시간 동안 대략 110℃에서 건조시키고, 여러 분량으로 나누어, 각각 대략 24시간 동안 대략 250℃에서 열 처리한다. 수율은 열 처리 온도와 상관없이 동일하고, 생성 분말은 생물활성 물질이 AlP 중합체에 물리적으로 혼입, 망상화, 캡슐화, 또는 뒤얽혀 있는 생물활성물-AlP 착물이다.

[0172] 실시예 13 - 생물활성물-AAlP 착물의 형성 (화학적 결합)

[0173] AAlP를, 적절한 농도의 질산은 용액을 질산알루미늄 및 수성 인산과 동시에 조합하는 것을 제외하고는, 상기에 기재된 졸 겔 방법과 유사하게 제조한다. 생성 겔은 은 이온 형태의 생물활성 물질이 AlP 중합체와 화학적으로 결합된 생물활성물-AlP 착물을 포함한다. 분산물을 여과하고, 세척한 다음, 상기에 기재된 온도에서 건조시켜, 바람직한 가공된 다공도를 제공한다.

[0174] 상기에 언급된 방법에 의해 형성된 AlP/생물활성물-AlP 착물은 약 0.5:1 내지 1.5:1의 P:Al 비율을 갖는다. AlP/생물활성물-AlP 착물이 상기 범위의 P:Al 비율을 갖는 것이 바람직한데, 그 이유는 바람직한 제형 화학법과 상용성인 적합한 입자 형태 및 성질을 제공하기 때문이다.

[0175] 필요에 따라, 본원에 기재된 생물활성물-AlP 착물을 농축물의 형태로 초기에 제조할 수 있는데, 여기서 일정량의 생물활성 물질을 제1 양의 AlP (생물활성 물질이 AlP 중합체에 물리적으로 혼입되는 경우) 또는 AlP를 형성하기 위해 사용된 전구체 물질의 제1 양 (생물활성 물질이 AlP 중합체와 화학적으로 결합되는 경우)과 초기에 조합한다. 이러한 초기 단계는 생물활성물-AlP 착물 축합물, 즉 고 농도의 생물활성 물질이 존재하는 축합물의 형성을 초래한다. 그 후에, 이러한 착물 축합물을 공급원료로서 사용하여, 상이한 최종 용도에 따른 적용을 충족시키는 다수의 상이한 제형을 제형화할 수 있다. 예시 실시양태에서, 착물 축합물을 추가 AlP와 조합하여 특정한 최종 용도에 따른 적용에 매우 적합한, 상대적으로 적은 생물활성 물질 함량을 갖는 생물활성물-AlP 착물을 제공할 수 있다. 이러한 착물 축합물을 제조하는 능력은 상이한 항미생물성 최종 용도에 따른 적용을 충족시키는 상이한 항미생물성 제형을 수득하는 방법에 있어서 바람직한 융통성을 부가한다.

[0176] 본원에 기재된 방식으로 제조된 AlP 및 생물활성물-AlP 착물은 고체 형태로, 바람직한 입자 크기 또는 크기 분포를 갖는 백색 분말로서 제공된다. 입자 크기는 결합 중합체, 및 특정한 최종 용도에 따른 적용과 같은 인자에 좌우될 것이다. 예시 실시양태에서, AlP는 약 0.5 내지 8 마이크로미터의 D50의 입자 크기 분포를 가질 수 있다. 예시 실시양태에서, AlP가 약 0.9 내지 1의 P:Al 비율, 및 약 1 마이크로미터의 D50 내지 약 4 마이크로미터 미만의 D90의 입자 크기 분포를 갖는 것이 바람직하다. 항미생물성 화학 조성물에 사용하기 위해서는, AlP가 약 20 마이크로미터 미만, 바람직하게는 약 0.5 내지 10 마이크로미터, 보다 바람직하게는 약 1.0 내지 8.0 마이크로미터 범위의 입자 크기를 갖는 것이 바람직하다. 약 0.5 마이크로미터 미만의 입자 크기는 특정 화학 제형의 가공을 방해하고 결합제 수지 흡수의 증가에 의해 필름 성질에 불리한 영향을 미칠 수 있다.

[0177] 상기에 기재된 방식으로 제조된 AlP 및 생물활성물-AlP 착물은 무정형 구조를 유지하고 결정질 구조로의 전환을 피하기 위한 목적으로 고온 건조 또는 다른 열 처리에 적용되지 않을 수 있다. 이러한 방식으로 형성된 AlP는, 저온 건조 후에는 바람직한 무정형 구조를 유지함이 발견되었다. 본원에 기재된 바와 같이 형성된 AlP는 이것이 생물활성 물질을 위한 캐리어로서 작용하여 항미생물성 화학 조성물에 사용하기에 바람직한 생물활성 구성성분의 조절 전달/방출을 제공하도록 하는 가공된 다공도를 포함하는 구조를 갖는다.

[0178] 본원에서 제조된 AAlP는 결정질 AlP와 비교하여, 현저히 증가한 물 흡착능 또는 재수화도를 나타내고, 이는 상기 AAlP가 건조에 의해 탈수되었을 때, 약 25 중량% 이하의 물을 함유할 때까지 재수화되도록 한다. 이러한 특징은 AlP가 부식에 대하여 어느 정도의 보호가 요구되는 최종 용도에 따른 적용에 사용될 때 특히 유용하고, 여

기서 AIP는 비-수계 결합 중합체에 존재한다. 이러한 적용에서, AIP는 생물활성 물질을 위한 캐리어이고 부식 억제 안료인 것 이외에도, 경화된 필름으로의 수분 침투를 지연시키고 경화된 필름을 통한 물의 확산을 제한하는 수분 제거제로서 작용한다.

[0179] 또한, 본원에 기재된 AIP의 재수화 특징은 저 습도의 최종 용도에 따른 적용에 사용될 때 유익할 수 있다. 이러한 적용에서, 생물활성 구성성분이 주위 수분의 부재하에 표면에 존재하는 것을 촉진하기 위해 경화된 항미생물성 화학 조성물 또는 복합재의 표면으로 이러한 생물활성 구성성분을 유도하는, 예를 들어 빌트인(built-in) 수송 메카니즘을 갖는 작용을 할 수 있는 고 수분 함량 또는 포화 수분 함량을 갖는 AIP가 사용될 수 있다. 이러한 방식으로 가공될 때, 상기 AIP를 포함하는 항미생물성 화학 조성물은 저 습도/수분 적용에서 바람직한 수준의 생물활성 구성성분을 표면에 제공하는 기능을 할 수 있다.

[0180] 본원에 기재된 항미생물성 화학 조성물은 선택된 결합 중합체를 AIP 및 생물활성 물질과 상기에 기재된 방식과 양으로 조합함으로써 제조된다. 그에 따른 생물활성물-AIP 착물은 조성물 제형화를 위해 건조된 분말의 형태로 제공될 수 있거나, 제형화 조건 또는 선호도에 따라 슬러리 또는 액체 현탁물의 형태로 제공될 수 있다.

[0181] 생물활성물-AIP 착물을 포함하는, 본원에 기재된 항미생물성 화학 조성물은 화학 조성물의 총 중량을 기준으로, 약 5 내지 1000 ppm, 바람직하게는 10 내지 900 ppm, 및 15 내지 800 ppm의 생물활성 물질을 포함한다. 이러한 항미생물성 화학 조성물은 (생물활성물-AIP 착물 및 결합 중합체 이외의) 다른 물질, 작용제, 및/또는 첨가제, 예컨대 안료, 충전제, 유동 조절제, 유동 안정화제, 조광 안정화제 등을 포함할 수 있다. 예를 들어, 은 생물활성 물질을 포함하는 항미생물성 화학 조성물은 조성물, 그로부터 형성된 건조 필름 및/또는 복합재 내에 함유된 은의 광 환원을 억제함으로써, 은의 활성 상태를 보존하도록 고안된 첨가제를 포함하여, 유효 사용 기간을 보장할 수 있다.

[0182] 생물활성제의 착물화

[0183] 다수의 유기 착물화제 중 어느 하나에 의한 생물활성제의 착물화 (생물활성제가 은 염인 경우)는 Ag-AIP 착물에서의 은 이온의 안정화 및 그의 항미생물성 향상에 있어서 예상치 못한 이점을 가짐이 발견되었다. Ag^{+}는 다양한 리간드, 예컨대 암모니아, 이미다졸 (IMI), 치환된 IMI, 및 이들의 조합과 착물화될 것이다. Ag^{+}의 가장 일반적인 배위수 (금속이 결합할 수 있는 기의 개수)는 2이고, 이는 가장 단순한 경우에, 암모니아와 착물을 형성하는 은의 구조가 $[Ag(NH_3)_2]^{+2}$일 것임을 의미한다. Ag^{+}의 환원 전위는 +0.799 V이고, 이는 Ag^{+} 이온의 은 금속으로의 환원을 위한 강력한 열역학적 구동력을 제공한다. 그러나, 은 이온의 암모니아와의 착물화는 환원 전위를 0.37 V로 변화시켜, 환원을 더욱 어렵게 한다. 그러므로, 착물화에 의한 은 이온의 안정화는 환원 및 그에 따른 변색 및 탈활성화에 대한 저항성을 증가시키는 작용을 한다.

[0184] 추가로, 킬레이트 Ag^{+}는 항미생물성 활성에 있어서 자유 은 이온보다 수차원 더 효과적인 것으로 밝혀졌다. Ag^{+} 이온은 보호된 착물에서의 킬레이트화 리간드에 의해 생물체 세포내에서 능동 수송되지만, 자유 이온은 그렇지 않은 것으로 생각된다. 그러므로, Ag-AIP로의 은 이온의 성공적인 착물화는 은 이온 (제형물에서)을 환원 및 변색으로부터 보호할 뿐만 아니라, 보다 더 효과적인 항미생물제로 만들 수 있다. 이는 부하 수준, 사용 범주 및 기간, 및 기준 가격과 관련하여 보다 더 융통성이 있는 물질 제형화기를 제공한다.

[0185] 은-암모늄 착물은 단순 선형 구조이다: $[NH_3---Ag---NH_3]^{+2}$. 예시 실시양태에서, IMI가 은을 위한 착물화 리간드로서 선택된다. IMI를 사용하여, 안정화 및 효력 증가에 있어서의 이점이 이러한 착물화된 은 화합물을 혼입한 AIP 시스템에서 발생하는지를 측정하는 시험을 수행한다. IMI는 방향족성을 나타내는 시클릭, 평면, 5원 고리이다. 비-양성자화 질소 원자는 분자의 전자 결합 구조를 설명해주는 방향족 파이 (π) 구름의 일부가 아닌 고립 전자쌍을 갖는다. 이들 전자는 양성자 또는 친전자성 기 (예를 들어, 은 이온)의 공격 지점을 제공한다. 은 이온은 비-양성자화 질소 기를 통해 2개의 IMI 분자와 결합할 것이라고 생각된다. 그러나 실제로는, 1개 초과의 Ag-IMI 착물을 함께 응집시키는, 은 원자 사이의 약한 결합이 또한 있을 수 있다. 따라서, 상이한 비율의 IMI 대 은 함량을 평가한다.

[0186] 다양한 AIP 조성물에 존재하는 포스페이트 기와 은 이온 또는 은 이온 착물 사이의 상호작용의 특성과 관련하여, 염소산염 (포스페이트와 유사하게 4개의 음전성 산소 기를 가짐)의 거동으로부터 유추하여, 포스페이트의 산소와 IMI의 수소 사이에, 또한 은 이온과 직접적으로 (IMI가 존재하지 않거나 반응 속도 인자가 $P-O^{-}$와

Ag^+ 사이의 1차 상호작용을 허용하는 경우) 정전기적 인력이 발생하는 것으로 이론화한다.

[0187] 예시 실시양태에서, 은 착물 및 그를 포함하는 Ag-AIP 착물을 형성하는 것과 관련하여 하기 인자를 평가한다: (a) 시스템의 은 이온과 IMI 사이의 비율 (1:2 및 1:4의 Ag:IMI 몰비로 2개의 수준이 선택됨); (b) AIP 축합 반응 전의 착물 제조 (이하, "예비-혼합"이라 함)와 AIP 축합 동안의 동일 반응계 형성의 대조; (c) 은-IMI 착물의 첨가 순서 및 지점 (AIP 축합 전 또는 AIP 축합 후); (d) 축합 반응의 온도 (실온 또는 승온, 예컨대 95℃); (e) 축합 후 중화 (암모니아에 의한 중화)의 생성물에 대한 영향; (f) 축합 반응의 첨가 순서 (B → A 또는 A → B); 및 (g) 분말 또는 겔/슬러리로서 은-IMI-포스페이트 생성물의 제공.

[0188] 시험은 Ag-AIP를 제조하는 상기에 기재된 2원 축합 방법에 대한 변화가 특정한 바람직한 개선을 제공할 수 있음을 보여주고, 여기서 상기 변화는 하기를 포함할 수 있다: (a) 가공 후에 색 안정성 및/또는 은 함량 보존의 개선된 성질을 제공하는 작용을 하는, 모든 단계에서의 첨가 시간의 단축; (b) 전형적으로 감소한 은 보존을 유도하는 임의의 단계에서의 고온 조건 (부반응이 증대되고 은 포스페이트 또는 은 산화물과 같은 바람직하지 않은 부산물을 유도하기 때문); (c) 각각의 요소 (예를 들어, 은-IMI 착물; 수산화알루미늄 (ATH) 슬러리)를 별도로 제조한 후에, 이들 요소를 함께 조합하고, 최종적으로 상기 조합물을 인산과 조합하는 것은 최상의 가능한 결과를 제공한다. 요소를 동일 반응계에서 제조하는 것보다는 별도로 제조하는 것이 각각의 요소를 완벽하게 가장 순수한 형태로 형성되도록 하는 것으로 생각된다. 그러므로, 알루미늄 포스페이트 축합 반응이 발생할 때, 은 이온 또는 은 이온 착물은 이미 형성되어 있고, AIP와의 최대 상호작용을 위해 형성되고 있는 AIP 착물에 갇힐 것이다.

[0189] Ag-IMI (1:2) 또는 Ag-IMI (1:4) 용액을 85% 인산에 첨가하는 것은 백색 슬러리를 제공함이 발견되었다. 수산화암모늄에 의한 후속 중화가 백색 침전물을 제공하고, 이것은 약 110℃에서 24시간 동안 백색 분말로 건조될 수 있다. 이러한 결과는 (황색 고체인 은 포스페이트 이외의) 별개의 생성물을 유도하는 은 착물과 포스페이트 사이의 기본적인 화학 상호작용이 존재함을 시사하는 것으로 이론화된다.

[0190] 또한, 적절한 비율의 ATH와 질산은으로 이루어진 슬러리를 85% 인산에 첨가하는 것은 안정한 백색 겔-유사 조성물을 제공함이 발견되었다. 상기 생성물의 안정성은 AIP 매트릭스 내에 은 이온이 균일하게 갇히는 것에 기초한다. 이러한 안정화는 슬러리에서 은 이온과 AIP의 포스페이트 기 사이의 이온성 착물화 때문인 것으로 생각된다.

[0191] 상기 시험 결과를 고려하면, 상기에 기재된 Ag 착물을 포함하는 Ag-AIP 착물을 형성하는 예시 합성 경로는 하기와 같다: (a) 실온의 수중에서 질산은과 IMI를 교반하면서 단순 조합함으로써 은-IMI-질산염 착물 [Ag-IMI]을 예비-제조한다; (b) ATH를 실온의 물에 분산시켜 ATH 슬러리 (20 중량%의 고체)를 예비-제조한다; (c) ATH 슬러리를 실온에서 교반에 의해 Ag-IMI 착물과 조합하여 혼합물을 형성한다; (d) ATH/Ag-IMI 혼합물 (염기)을 85% 인산에 실온에서 교반하면서 일정 시간 동안, 예를 들어 약 1시간 동안 첨가한다 (이 첨가 순서에서, 산성 pH는 착물의 은 이온을 안정화시키는 작용을 함); (e) 조합 후에, 실온에서 추가 시간 동안, 예를 들어 1시간 동안 혼합물을 반응시킨다; (f) 반응 혼합물이 점성 겔-유사 조성물이 되고, 여기서 겔은 수계 적용에 사용하기 위해 단리될 수 있거나, 예를 들어 약 110℃에서, 일정 시간 동안, 예를 들어 약 24시간 동안 가열함으로써 백색 분말로 건조될 수 있다.

[0192] 착물화된 은 염을 포함하는 Ag-AIP 착물을 형성하는 것의 특징이 Ag-AIP 착물의 2원 축합 제조 방법을 사용하는 상황에서 기재되었지만, 본원에 기재된 착물화된 생물활성 물질, 예를 들어 은 염이 본원에 기재된 Ag-AIP 착물의 다른 나머지 제조 방법 또는 공정에 따라 Ag-AIP 착물을 형성하는 데에도 사용될 수 있고, 이러한 다른 방법에서 생물활성 물질, 예를 들어 은 염은 착물화된 생물활성 물질, 예를 들어 착물화된 은 염으로 대체될 수 있음을 알아야 한다.

[0193] 또한, 착물화된 생물활성 물질을 알루미늄 공급원과 조합한 후에 AIP 착물을 형성하는 예가 기재되었지만, 착물화된 생물활성 물질은 알루미늄 공급원과 포스페이트 공급원이 함께 조합되는 동안에 별도로 첨가될 수 있거나, 알루미늄 공급원과 예비조합되는 대신에 포스페이트 공급원과 예비조합될 수 있음을 알아야 한다.

[0194] 금속 산화물의 첨가

[0195] 금속, 예컨대 아연 및/또는 구리 등의 다양한 산화물을 본원에 기재된 생물활성물-AIP 착물에 혼입할 수 있다. 예를 들어, 생물활성물-AIP 착물에 산화아연이 존재하는 것은 자외선을 흡수하고 고유의 항미생물성을 제공하기 위한 목적에 유용할 수 있는 것으로 이론화된다. 예를 들어, 산화아연을 예비-제조된 ATH 슬러리 (상기의 단계 (b))에 첨가하고, 화학 조성 및 성능 성질을 측정한다. 상기 반응 생성물의 XRD 분석은 임의의 산화아연 또는

인산아연 결정질 요소로 인한 결정 구조를 나타내지 않고, 이는 아연이 Ag-AlP 착물의 일부로서 무정형 요소에 포함되었음을 시사한다. 상기에 언급된 바와 같이, 아연 요소의 존재는 광 안정성을 향상시키고 조성물의 항미생물성 활성을 증대시키는 작용을 한다.

[0196] 산화아연이 본원에 기재된 생물활성물-AlP 착물에 혼입되는 금속 산화물의 예로서 언급되었지만, 구리, 마그네슘, 바륨, 칼슘, 및 이들의 조합을 포함하나, 이들로 제한되지는 않는 금속의 다른 산화물이 본원에 기재된 항미생물성 조성물의 범주 내에 포함됨을 알아야 한다. 또한, 본원에 기재된 생물활성물-AlP 착물을 형성하기 위해 1종 이상의 금속 산화물을 첨가하는 것이 본원에 기재된 생물활성물-AlP 착물의 다른 제조 방법 또는 공정 중 어느 하나에 의해서도 수행될 수 있음을 알아야 한다.

[0197] 금속 산화물은 생물활성물-AlP 착물의 제조 방법에서, AlP를 형성하는 단계 전에, AlP를 형성하는 단계 동안에, 또는 AlP를 형성하는 단계 후에 도입할 수 있다. 예를 들어, 금속 산화물은 AlP를 형성할 때 존재하고, 이는 금속 산화물이 생물활성 물질과 예비조합될 수 있거나, AlP가 형성될 때 생물활성 물질과 별도로 조합될 수 있음을 의미한다. 금속 산화물은 별도로 제공될 수 있고/거나, 생물활성 물질, 예를 들어 은 염과 함께 제공될 수 있고/거나, 알루미늄 공급원과 포스페이트 공급원 중 어느 하나 또는 이들 둘 모두와 예비조합될 수 있다. 예를 들어, 생물활성 물질이 착물화되는 경우에, 금속 산화물을 착물화 전에 또는 착물화 후에 생물활성 물질에 첨가할 수 있다. 예시 실시양태에서, 금속 산화물을 생물활성 물질이 착물화된 후에 첨가한다.

[0198] 생물활성물-AlP 착물의 추가 실시예

[0199] 본원에 기재된 생물활성물-AlP 착물의 추가 실시예가 참조를 위해 제공된다. 이들 실시예를 기재된 바와 같이 제조하여, 하기에 언급된 미생물에 대하여 최소 억제 농도 (MIC)를 측정함으로써 항미생물성 효력을 시험하고, 하기에 기재된 바와 같이 광 안정성을 시험한다.

[0200] 추가 실시예 1: [CL20] Ag-AlP 착물

[0201] ATH 슬러리의 제조 - 대략 98.3 그램의 ATH를 560 그램의 증류수에 분산시킨다. 별도의 용기에서, 대략 11 그램의 $AgNO_3$을 60 그램의 증류수에 용해시킨다. $AgNO_3$ 용액을 ATH 슬러리에 교반하면서 적가한다.

[0202] 축합 반응 - 대략 144 그램의 85% 인산을 반응 플라스크에 첨가한다. ATH/$AgNO_3$ 슬러리를 산에 교반하면서 적가한다. 반응 혼합물을 2시간 동안 실온의 암실에서 교반한다. 반응이 완료되면 Ag-AlP 착물이 형성되고, 혼합물은 별개의 액체 층이 존재하지 않는 습윤화된 케이크이다. 케이크의 고체 (%)를 측정하고, Ag-AlP 착물은 수계 제형에 항미생물성 첨가제로서 직접 사용하기에 적합하다.

[0203] 추가 실시예 2: [CL21] AgIMI(1:2)-AlP 착물

[0204] 예비-혼합 요소의 제조 - 대략 14.1 그램의 IMI를 50 그램의 증류수와 조합한다. 별도의 용기에서, 대략 17.7 그램의 $AgNO_3$을 50 그램의 증류수에 용해시킨다 (암실에서 반응을 진행하고 보관). IMI 용액을 $AgNO_3$ 용액에 적가하고, 용액을 30분 동안 실온의 암실에서 교반하여 Ag-IMI 착물을 형성한다. 별도의 용기에서, 대략 157.3 그램의 ATH를 560 그램의 증류수에 분산시킨다. Ag-IMI 착물 용액을 ATH 슬러리에 교반하면서 적가하고, 생성 혼합물을 실온의 암실에서 30분 동안 혼합한다.

[0205] 축합 반응 - 대략 230 그램의 85% 인산을 반응 플라스크에 첨가한다. ATH 및 Ag-IMI 착물 혼합물을 산에 실온에서 교반하면서 적가한다. 반응 혼합물을 2시간 동안 실온의 암실에서 교반한다. 반응이 완료되었을 때, 혼합물은 별개의 액체 층이 존재하지 않는 AgIMI-AlP 착물로 구성된, 습윤화된 케이크이다. 케이크의 고체 (%)를 측정하고, AgIMI-AlP 착물은 수계 제형에 항미생물성 첨가제로서 직접 사용하기에 적합하다.

[0206] 추가 실시예 3: [CL22] AgIMI(1:4)-AlP 착물

[0207] 대략 28.3 그램의 IMI를 사용하는 것을 제외하고는, 추가 실시예 2의 절차를 따른다.

[0208] 추가 실시예 4: [CL47] AgIMI(1:4)-ZnO-AlP 착물

[0209] 예비-혼합 요소의 제조 - 대략 27.2 그램의 IMI를 50 그램의 증류수와 조합한다. 별도의 용기에서, 대략 17.7 그램의 $AgNO_3$을 50 그램의 증류수에 용해시킨다. IMI 용액을 $AgNO_3$ 용액에 적가하고, 혼합물을 30분 동안 실온의 암실에서 교반하여 AgIMI 착물을 형성한다. 별도의 용기에서, 대략 157.3 그램의 ATH 및 53.1 그램의 ZnO를 550 그램의 증류수와 조합하고 30분 동안 실온에서 분산시킨다. AgIMI 용액을 ATH-ZnO 슬러리에 적가하고 30분 동안 실온에서 혼합한다.

[0210] 축합 반응 - ATH-ZnO 및 AgIMI 슬러리를 대략 227.8 그램의 85% 인산에 적가한다. 유리용기를 50 그램의 증류수로 세척하고 세척물을 반응 혼합물에 첨가한다. 반응 혼합물을 2시간 동안 실온의 암실에서 교반하여 AgIMI-ZnO-AlP 착물을 형성한다.

[0211] pH를 조정하는 중화 옵션 - 생성 반응 슬러리를 목표 pH까지 대략 28% NH_4OH로 적정한다. 전형적으로, 반응이 종료될 때 슬러리의 pH는 약 2.5 내지 3.0이다. 예를 들어, 대략 174.7 그램의 28% NH_4OH가 슬러리의 pH를 7.03으로 만드는 데에 사용된다.

[0212] 후속 가공 옵션 - AgIMI-ZnO-AlP 착물을 포함하는, 반응으로부터 생성된 슬러리 혼합물을 겔로서 직접 사용할 수 있다 (물의 증발에 의한 약간의 농축이 특정 고체 함량에 도달하는 데에 도움이 될 수 있음). 또는, 반응 슬러리를 여과할 수 있고, 필터 케이크를, 예를 들어 약 110℃의 승온에서 24시간 동안, 또는 진공하에 약 60℃ 정도에서 24시간 동안 백색 분말로 건조시킨다.

[0213] 추가 실시예 5: [CL50] Ag-ZnO-AlP 착물

[0214] 예비-혼합 요소의 제조 - 대략 1 그램의 $AgNO_3$을 50 그램의 증류수에 용해시킨다. 별도로, 대략 84.5 그램의 ATH 및 대략 20.8 그램의 ZnO를 560 그램의 증류수와 조합하고 실온에서 30분 동안 분산시킨다. $AgNO_3$ 용액을 ATH-ZnO 슬러리에 적가하고 30분 동안 실온의 암실에서 혼합한다.

[0215] 축합 반응 - ATH-ZnO-$AgNO_3$ 슬러리를 대략 122.5 그램의 85% 인산에 적가한다. 유리용기를 50 그램의 증류수로 세척하고 반응 혼합물에 첨가한다. 혼합물을 2시간 동안 실온의 암실에서 교반하여 Ag-ZnO-AlP 착물을 형성한다.

[0216] 후속 가공 옵션 - 상기의 추가 실시예 4에서 기재된 것과 동일함.

[0217] 추가 실시예 6: [CL49] AgIMI(1:2)-ZnO-AlP 착물

[0218] 예비-혼합 요소의 제조 - 대략 13.6 그램의 IMI를 50 그램의 증류수에 용해시킨다. 별도로, 대략 17.7 그램의 $AgNO_3$을 50 그램의 증류수에 용해시킨다. IMI 용액을 $AgNO_3$ 용액에 적가하고 30분 동안 실온의 암실에서 교반하여 AgIMI 착물을 형성한다. 별도로, 대략 123.9 그램의 ATH 및 33.5 그램의 ZnO를 560 그램의 증류수와 조합하고 실온에서 30분 동안 분산시킨다. AgIMI 용액을 ATH-ZnO 슬러리에 적가하고 30분 동안 실온의 암실에서 교반한다.

[0219] 축합 반응 - ATH-AgIMI-ZnO 슬러리를 실온에서 대략 179.4 그램의 85% 인산에 적가한다. 유리용기를 50 그램의 증류수로 세척하고 반응 혼합물에 첨가한다. 반응 슬러리를 2시간 동안 실온의 암실에서 교반하여 AgIMI-ZnO-AlP 착물을 제조한다.

[0220] 후속 가공 옵션 - 상기의 추가 실시예 4에서 기재된 것과 동일함.

[0221] 추가 실시예 7: [CL48] AgIMI(1:4)-ZnO-AlP 착물

[0222] 대략 27.2 그램의 IMI를 사용하는 것을 제외하고는, 추가 실시예 6의 절차를 따른다.

[0223] 추가 실시예 8:[CL51/52] AgIMI(1:4)-Cu_2O(Ag:Cu=1:1)-AlP 착물

[0224] 예비-혼합 요소의 제조 - 대략 27.2 그램의 IMI를 50 그램의 증류수에 용해시킨다. 별도로, 대략 17.7 그램의 $AgNO_3$을 50 그램의 증류수에 용해시킨다. IMI 용액을 $AgNO_3$ 용액에 적가하고 30분 동안 실온의 암실에서 교반하여 AgIMI 착물을 형성한다. 별도로, 대략 153.3 그램의 ATH 및 대략 12.7 그램의 Cu_2O를 560 그램의 물과 혼합하고 30분 동안 분산시킨다. AgIMI 용액을 ATH-Cu_2O 슬러리에 적가하고 30분 동안 실온의 암실에서 혼합한다.

[0225] 축합 반응 - ATH-AgIMI-Cu_2O 슬러리를 실온에서 대략 222.1 그램의 85% 인산에 적가한다. 유리용기를 50 그램의 증류수로 세척하고 반응 혼합물에 첨가한다. 반응 슬러리를 2시간 동안 실온의 암실에서 교반하여 AgIMI-Cu_2O-AlP 착물을 제조한다.

[0226] 반응 혼합물을 여과하고, 예를 들어 약 110℃의 승온에서 24시간 동안 건조시켜 백색 분말을 형성한다 [CL51].

[0227] pH를 조정하는 중화 옵션 - 추가 실시예 4의 절차. [CL52] - 암모니아 처리.

[0228] 추가 실시예 9: [CL53/54] Ag-ZnO-Cu_2O(Ag:Cu 1:0.5; Ag:Zn 1:3)-AlP 착물

[0229] 예비-혼합 요소의 제조 - 대략 17.7 그램의 $AgNO_3$을 50 그램의 증류수에 용해시킨다. 별도로, 대략 153.3 그램의 ATH 및 대략 41.8 그램의 ZnO 및 대략 6.3 그램의 Cu_2O를 560 그램의 증류수와 조합하고 실온에서 30분 동안 분산시킨다. $AgNO_3$ 용액을 ATH-ZnO-Cu_2O 슬러리에 적가하고 30분 동안 실온의 암실에서 혼합한다.

[0230] 축합 반응 - ATH-$AgNO_3$-ZnO-Cu_2O 슬러리를 실온에서 대략 222.1 그램의 85% 인산에 적가한다. 유리용기를 50 그램의 증류수로 세척하고 반응 혼합물에 첨가한다. 반응 슬러리를 2시간 동안 실온의 암실에서 교반하여 Ag-ZnO-Cu_2O-AlP 착물을 제조한다.

[0231] CL53은 여과하지 않은 것이다 - 축합 반응 혼합물을, 예를 들어 약 110℃의 승온에서 24시간 동안 백색 분말로 건조시킨다.

[0232] CL54는 여과한 것이다 - 축합 반응 혼합물을 여과하고, 예를 들어 약 110℃의 승온에서 24시간 동안 건조시켜 백색 분말을 형성한다.

[0233] 추가 실시예 10: [CL55/56/57] AgIMI(1:4)-ZnO-Cu_2O(Ag:Cu 1:0.5; Ag:Zn 1:3)-AlP 착물

[0234] 예비-혼합 요소의 제조 - 대략 27.2 그램의 IMI를 50 그램의 증류수에 용해시킨다. 별도로, 대략 6.3 그램의 Cu_2O를 50 그램의 증류수에 용해시킨다. IMI 용액을 Cu_2O 용액에 적가하고 30분 동안 실온의 암실에서 교반한다. 별도로, 대략 17.7 그램의 $AgNO_3$을 50 그램의 증류수에 용해시킨다. $AgNO_3$ 용액을 Cu_2O-IMI 용액에 적가하고 30분 동안 실온의 암실에서 교반하여 AgIMI-Cu 착물을 제조한다.

[0235] 별도로, 대략 137.6 그램의 ATH 및 대략 41.8 그램의 ZnO를 560 그램의 증류수와 혼합하고 30분 동안 분산시킨다.

[0236] AgIMI-Cu_2O 용액을 ATH-ZnO 슬러리에 적가하고 30분 동안 실온의 암실에서 혼합하여 ATH-AgIMI-Cu_2OZnO 용액을 형성한다.

[0237] 축합 반응 - ATH-AgIMI-Cu_2O-ZnO 슬러리를 실온에서 대략 199.4 그램의 85% 인산에 적가한다. 유리용기를 50 그램의 증류수로 세척하고 반응 혼합물에 첨가한다. 반응 슬러리를 2시간 동안 실온의 암실에서 교반하여 AgIMI-Cu_2OZnO-AlP 착물을 제조한다.

[0238] CL55 - 최종 반응 혼합물의 절반을 여과하고, 예를 들어 약 110℃의 승온에서 24시간 동안 건조시켜 백색 분말을 형성한다.

[0239] 반응물의 나머지 절반을 상기에 기재된 바와 같이 중화시킨다.

[0240] CL56 - 최종 반응 혼합물을 중화시키고, 예를 들어 약 110℃의 승온에서 24시간 동안 건조시키지만, 여과하지 않는다.

[0241] CL57- 최종 반응 혼합물을 중화시키고, 여과하고, 예를 들어 약 110℃의 승온에서 24시간 동안 건조시킨다.

[0242] 항미생물성 활성에 대한 조성의 영향 (MIC)

[0243] 추가 실시예의 항미생물성 효력을 하기에 대하여 각각 MIC를 측정함으로써 결정한다: (a) 슈도모나스 아에루기노사 (*Pseudomonas aeruginosa*; 박테리아); (b) 에스케리키아 콜라이 (*Escherichia coli*; 박테리아); (c) 스타필로코쿠스 아우레우스(*Staphylococcus aureus*); (d) 칸디다 알비칸스 (*Candida albicans*; 효모); 및 (d) 애스퍼질루스 나이저 (*Aspergillus niger*; 진균). MIC는 생물체의 성장이 억제되는 활성 성분의 최저 농도 (ppm)이다. 표준 희석 방법을 사용한다.

[0244] 하기 표 1에서 설명된 바와 같이, 실시예 시리즈 CL20 내지 CL50은 MIC 성능에 대한 AgAlP, AgIMI 착물화, 및 ZnO 포함의 영향을 입증하였고, 이는 하기와 같이 요약된다:

[0245] 1. AgAlP의 모든 실시예는 약 4 ppm 미만에서, 다수의 경우에 약 1 ppm 미만에서 박테리아 성장의 억제에 효과적이다;

[0246] 2. 조성물에 ZnO를 첨가하는 것은 효모 및 진균의 방제에 필요한 MIC를 유의하게 감소시킨다;

[0247] 3. AgIMI 착물과 ZnO의 조합은 진균 성장을 추가로 최소화한다.

[0248] 시리즈 CL51 내지 CL57은 시스템 성질에 대한 구리 (Cu_2O)의 영향을 시험한다. 시험한 농도 수준에서, 구리는 Ag-IMI-AIP-Zn 시스템 [CL47=CL57=CL54]의 항미생물성 성능에 대하여 유의한 영향을 미치지 않는다. 그러나, 조성물에 이러한 수준의 구리를 포함시키는 것은 하기에 논의된 바와 같이, 조성물을 함유하는 제형의 색 안정성에 대하여 놀라운 유익한 영향을 미친다.

표 1

MIC 시험의 요약

		AP 착물 유형	평가	pH	레포트	MIC-ppm 퍼. 아에루기노사	이. 콜라이	헥스. 아우레우스	효모	진균
CL20	겔	$AgNO_3$	Ag-AP 대조군	2.5	#1		2	<1	63	16
			산성							
CL21	겔	AgIMI (1:2)	AP 중의 Ag-IMI 착물	2.6	#1		<1	<1	125	63
			산성							
CL22	겔	AgIMI (1:4)	AP 중의 Ag-IMI 착물	2.6	#1		<1	<1	125	63
CL47	분말	AgIMI (1:4) NH_3 ZnO	AP 중의 Ag-IMI 착물 및 ZnO	7.6	#1		2	2	7.8	125
			NH_4로 중화		#2	0.78	3	0.78	12.5	100
CL48	슬러리	AgIMI (1:4) ZnO	AP 중의 Ag-IMI 착물 및 ZnO	3.1	#1		3.8	2	7.8	16
			고 수준의 IMI							
CL49	슬러리	AgIMI (1:2) ZnO	AP 중의 Ag-IMI 착물 및 ZnO	2.9	#1		<1	<1	<1	7.8
					#2	0.39	1.5	0.39	12.5	50
CL50	슬러리	$AgNO_3$ ZnO	AP 중의 Ag 및 ZnO	2.6	#1		<1	<1	<1	16
					#2	0.78	3	0.78	12.5	25
CL51	분말	AgIMI(1:4)-Ag:Cu (1:1)	AP 중의 Ag-IMI 착물 및 Cu_2O	6.7						
CL52	분말	AgIMI(1:4)-Ag:Cu (1:1)	AP 중의 Ag-IMI 착물 및 Cu_2O	6.8	#2	12.5	12.5	12.5	100	100
			NH_4로 중화							
CL53	분말	$AgNO_3$-AgCu(1:0.5)-AgZn(1:3)	ZnO 및 Cu_2O를 갖는 AgAP 착물	5.4	#2	50	100	100	50	100
			IMI 착물 부재; 비여과							
CL54	분말	$AgNO_3$-AgCu(1:0.5)-AgZn(1:3)	ZnO 및 Cu_2O를 갖는 AgAP 착물	4.7	#2	25	50	25	25	100
			IMI 착물 부재; 여과							
CL55	분말	AgIMI(1:4)-AgCu(1:0.5)-AgZn(1:3)	ZnO 및 Cu_2O를 갖는 AgIMI 착물	6.3	#2					
			AP 중; 비여과; 비중화							
CL56	분말	AgIMI(1:4)-AgCu(1:0.5)-AgZn(1:3)	ZnO 및 Cu_2O를 갖는 AgIMI 착물	6.6	#2	0.78	3.1	1.56	12.5	100
			AP 중; 비여과; 중화							
CL57	분말	AgIMI(1:4)-AgCu(1:0.5)-AgZn(1:3)	ZnO 및 Cu_2O를 갖는 AgIMI 착물	6.7	#2	0.78	3.1	0.78	12.5	100
			AP 중; 여과; 비중화							

[0249]

[0250] 광 안정성/색 변화에 대한 조성의 영향 - UV 안정성 시험

[0251] 페인트 형태의 샘플 화학 조성물을 상기에 제시된 범위의 양으로 결합 중합체로서 라텍스를 사용하여 제조한다. 상기 페인트 제형에 혼입된 Ag-AIP 착물의 성질을 건조 필름에서의 100 ppm 및 500 ppm의 2개의 은 수준에서 시험한다.

[0252] 색 안정성 데이터가 하기에 제시된 표 2에 요약되어 있다.

표 2

색 안정성 ΔE - QUV (B 벌브) - 28일의 노출			
샘플	조성	ΔE	ΔE
		100 ppm	500 ppm
CL42	AgIMI (ZnO 부재)	12.41	
CL47	AgIMI + ZnO	3.5	
CL50	AgAP + ZnO (IMI 부재)	5.4	
CL52	CL47 + Cu_2O (고수준)	1.91	5.43
CL53	CL50 + Cu_2O (저수준)	4.02	10.77
CL56	CL47 + Cu_2O (저수준) NF	2.26	10.11
CL57	CL47 + Cu_2O (저수준) F	2.52	
NF - 비여과; F - 여과			

[0253]

[0254] 표 2에 제시된 데이터는 QUV 챔버 (UV B 벌브)에서 28일 동안 UV 광에 노출된 후의 색 변화 (BYK 스펙트로-가이드 스피어 글로스 분광광도계(Spectro-Guide Sphere Gloss Spectrophotometer)를 사용하여 ΔE로서 측정됨)를 나타낸다. 약 2.0 미만의 색 변화는 육안으로 거의 확인할 수 없고, 한편 약 5.0 이하의 색 변화는 샘플의 초기 상태와 비교하여 매우 미약한 음영차를 나타내며 대부분의 적용에서 허용되는 것으로 간주될 것이다.

[0255] CL42와 CL47을 비교할 때, 색 안정성에 대한 ZnO의 유리한 영향이 명확하게 입증된다. 색 변화는 12.41에서 거의 인지할 수 없는 3.5로 감소한다.

[0256] 산화제1구리의 첨가는 이러한 이점을 증가시키고, 그의 농도의 함수로서 관찰된다 (즉, 산화제1구리의 수준이 증가할수록, 효과도 우수함). 이러한 경향은 CL51 (1.91), CL56 (2.26), 및 CL57 (2.52)의 결과에서 추가로 설명된다.

[0257] 일반적으로, Ag-AIP 착물에 ZnO의 존재는 더욱 향상된 광 안정화를 제공하는 것으로 확인된다. IMI-Ag 착물화는 2차/부수적 광 안정화 효과에 기여한다. 산화제1구리의 포함은 광 안정화에 추가로 기여한다.

[0258] 본원에 기재된 항미생물성 화학 조성물은 목적하는 수준의 항미생물성 저항성을 제공하기 위해 목적하는 기판 표면에 적용되는 코팅 조성물의 형태로 제공될 수 있다. 이러한 항미생물성 코팅 조성물은 프라이머(primer), 미드 코트(mid coat), 또는 탑 코트(top coat)로서 사용되도록 제형화될 수 있다. 추가로, 이러한 항미생물성 코팅 조성물은 프라이머의 존재하에 또는 그의 부재하에, 미드 코트 또는 탑 코트로서 사용될 수 있다. 추가로, 본원에 기재된 항미생물성 화학 조성물은 착색될 수 있거나 착색되지 않을 수 있는 사용되는 기판 표면 또는 기저 코팅물 상에 위치하는 투명 코팅물로서 제형화됨으로써, 사용되는 기판의 색과 매칭되는 특수 착색 등을 필요로 하지 않으면서 항미생물성 저항성을 제공하기 위한 다양한 기판 또는 기저 코팅물 표면 상의 상기 투명 코팅물의 사용을 용이하게 할 수 있다.

[0259] 본원에 기재된 생물활성물-AIP 착물은 다양한 최종 용도에 따른 적용을 충족시키기 위해 제형화의 용이함을 허용하면서, 표면 항미생물성 효력을 보장하는 방식으로 생물활성 요소를 제공한다. 생물활성물-AIP 착물은 화학 조성물, 건조 필름, 복합재, 또는 제형 물품 전체에 걸쳐서 생물활성 성분, 예를 들어 은 이온의 균일한 분포를 제공한다. 생물활성물-AIP 착물은 수분 유도성 수송을 위한 공간을 제공하도록 가공된 성질을 갖는 제형화된 벌크 매트릭스를 제공한다: 벌크에서의 물 및 용해 화학종의 흡수, 흡착, 탈착, 확산. 생물활성물-AIP 착물은 혼입된 생물활성 물질의 농도에 기초하여 착물의 친수성 및 형태 (표면적 및 다공도)에 의해 1종 이상의 생물활성 구성성분, 예를 들어 은 이온을 방출하도록 특수하게 가공된다. 본원에 기재된 생물활성물-AIP 착물은 벌크 복합재 또는 필름의 결합제 매트릭스의 특정 관능기와 포스페이트 관능기의 결합을 통해 첨가제로서, 또는 안료와 같은 제형물에 도입될 수 있다. 추가로, 열적으로 안정한 형태의 생물활성물-AIP 착물은 분말 코팅 제형에 혼입되어 이러한 표면을 항미생물성으로 만들 수 있다.

[0260] 한 예시 실시양태에서, 본원에 기재된 항미생물성 화학 조성물은 물품의 벌크가 생물활성 물질 또는 그의 구성성분, 예를 들어 은 이온을 위한 저장소 또는 데포(depot)로서 사용되는 필름으로 제형화될 수 있다. 이러한 제형은 항미생물성 메카니즘의 하기 측면을 최적화하도록 가공될 수 있다: 필름으로의 물의 확산, 생물활성물-AIP 착물로의 물의 흡수 및 흡착, 착물 내의 염 용해, 착물의 이온 수송, 매트릭스를 통한 보호 표면으로의 생

물활성 물질 또는 그의 구성성분 수송.

[0261] 별법으로, 본원에 기재된 항미생물성 화학 조성물은, 예를 들어 항미생물제의 혼입이 비용 관점에서 실용적이지 않을 수 있는 경우, 또는 유효한 방제 메카니즘이 가능하지 않을 수 있는 경우 (예를 들어, 불투수성 플라스틱)에, 물품의 벌크에 항미생물제를 혼입하지 않으면서 표면에 항미생물성을 제공하기 위해 물의 확산/생물활성 물질 또는 그의 구성성분의 수송 성질과 균형을 맞춘, 물리적 내구성을 위해 가공된 강화 박막 필름 (예를 들어, 약 25 μ 미만, 바람직하게는 약 10 μ 미만의 필름 두께)으로 제형화될 수 있다.

[0262] 상기에 기재된 바와 같이, 조합된 AIP 및 생물활성 물질은 생물활성물-AIP 착물의 형태로 제공되고, 여기서 생물활성 물질은 착물을 제조하기 위해 사용된 특정 방법에 따라, AIP 중합체와 화학적으로 결합되고, 예를 들어 AIP 중합체의 백본에 제공되거나, AIP 중합체에 물리적으로 혼입, 망상화, 캡슐화, 또는 뒤얽혀 있다. 또한, 생물활성 물질 또는 그의 구성성분은 AIP 중합체에 화학적 및 물리적으로 존재할 수 있다. 예를 들어, 생물활성물-AIP 착물을 AIP가 형성될 때 바람직한 생물활성 물질을 조합하여 형성함으로써, 생물활성 물질 또는 그의 구성성분과 AIP 사이의 화학 결합을 촉진할 경우에, 추가 생물활성 물질의 화학량론적 초과량은 AIP 분자에 물리적으로 혼입될 수 있고, 이 경우에 생성되는 생물활성물-AIP 착물은 화학적으로 결합되고 물리적으로 혼입된 형태로 존재하는 생물활성 물질 또는 그의 구성성분을 포함할 것이다.

[0263] 상기에서 입증된 바와 같이, 본 발명의 실시양태는 신규한 항미생물성 화학 조성물, 신규한 생물활성물-AIP 착물, 및 그의 신규한 제조 방법을 제공한다. 각각이 한정된 개수의 실시양태와 관련하여 설명되었지만, 한 실시양태의 구체적인 측면이 본 발명의 다른 실시양태에 의한 것이어서는 안 된다. 단일 실시양태가 본 발명의 모든 측면을 대표하지 않는다. 일부 실시양태에서, 조성물 또는 방법은 본원에서 언급되지 않은 다수의 화합물 또는 단계를 포함할 수 있다.

[0264] 예를 들어, 필요에 따라, 항미생물성 화학 조성물은 구체적으로 기재된 것들 이외에도, 생물활성 가치를 갖는 것으로 공지된 1종 이상의 생물활성 물질을 별도로 또는 함께 추가로 포함하도록 제조될 수 있다. 이러한 추가 생물활성 물질은 생물활성물-AIP 착물에 혼입될 수 있거나 혼입되지 않을 수 있고, 예를 들어 결합 중합체와의 별도의 분산물로서 존재할 수 있고, 화학 조성물의 항미생물성 상승 효과를 증가시키거나 보완하거나 제공하는 작용을 할 수 있다.

[0265] 또한, 본원에서 제공된 실시예에서 제시된 항미생물성 화학 조성물은 무정형 형태의 AIP를 포함하는 것으로 기재되었지만, 본원에 기재된 항미생물성 화학 조성물은 공지된 결정질 형태의 AIP를 추가로 포함할 수 있고, 무정형 및 결정질 형태의 조합인 AIP를 포함할 수 있음을 알아야 한다.

[0266] 다른 실시양태에서, 조성물 또는 방법은 본원에서 열거되지 않은 화합물 또는 단계를 포함하지 않거나, 그러한 화합물 또는 단계가 실질적으로 존재하지 않는다. 기재된 실시양태는 변화 및 수정된다. 화학 조성물 및/또는 AIP의 제조 방법은 다수의 작용 또는 단계를 포함하는 것으로 기재되었다. 이들 단계 또는 작용은 달리 지시하지 않는 한, 임의의 순차 또는 순서로 실시될 수 있다. 마지막으로, 본원에 기재된 수치는 단어 "약" 또는 "대략"이 수치를 서술하는 데에 사용되었는지에 상관없이 근사치를 의미하는 것으로 해석되어야 한다. 첨부된 특허청구범위는 그러한 수정 및 변화를 모두 본 발명의 범주 내에 포함시키고자 한다.