



УКРАЇНА

(19) UA

(11) 80969

(13) C2

(51) МПК (2006)

C05G 3/00

C05G 5/00

C01B 33/143 (2006.01)

МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ
І НАУКИ УКРАЇНИДЕРЖАВНИЙ ДЕПАРТАМЕНТ
ІНТЕЛЕКТУАЛЬНОЇ
ВЛАСНОСТІОПИС
ДО ПАТЕНТУ НА ВИНАХІД(54) ВОДНИЙ РОЗЧИН НЕКОЛОЇДНОЇ КРЕМНІЄВОЇ ТА БОРНОЇ КИСЛОТ, СПОСІБ ЙОГО ОДЕРЖАННЯ
ТА ЙОГО ЗАСТОСУВАННЯ

1

(21) 20041109804

(22) 28.05.2003

(24) 26.11.2007

(86) PCT/NL03/00404, 28.05.2003

(31) 02077147.3

(32) 31.05.2002

(33) EP

(72) КРОС ВІЛЛЕМ АДРІАНОС, NL/ZA

(73) САБАЛО Н.В.

(56) WO 9856715 A, 17.12.1998

US 5458812 A, 17.10.1995

US 3462374 A, 19.08.1969

US 2630410 A, 03.03.1953

DE 19918692 A, 02.11.2000

EP 0835854 A, 15.04.1998

(57) 1. Водний розчин, що містить борну та неколоїдну кремнієву кислоту, а також добавку, що абсорбує воду, де кремній у вигляді стабілізованих олігомерів кремнієвої кислоти, які мають розмір, менший, ніж 4 нм, присутній у концентрації від 0,01 до 2 мас. %, а бор у вигляді борної кислоти присутній у концентрації від 0,0001 до 4 мас. %, при цьому розчин має значення рН нижче 2.

2. Розчин згідно з п. 1, який відрізняється тим, що здатний до фільтрування через фільтр 0,1 мікрона.

3. Розчин згідно з одним з попередніх пунктів, який відрізняється тим, що здатний до фільтрування через фільтр 20000 дальтон.

4. Розчин згідно з одним з попередніх пунктів, який відрізняється тим, що співвідношення кремнію до бору становить від 0,1 до 1000.

5. Розчин згідно з одним з попередніх пунктів, який відрізняється тим, що добавка, що абсорбує воду, являє собою полісорбат, рослинну камедь, заміщену целюлозу, полігліцериновий естер жирних кислот, поліетиленгліколь, полідекстрозу, пропіленгліколь, пропіленгліколь альгінат, естер поліоксіетиленгліколю, пектин або амідований пектин, естер цукрози та жирних кислот, ацетильований крохмаль або гідроксипропіловий

2

крохмаль, фосфати крохмалю, сечовину, сорбіт, мальтит, вітаміни або їх суміші.

6. Розчин згідно з одним з попередніх пунктів, який відрізняється тим, що добавка, що абсорбує воду, присутня у концентрації принаймні 30 %.

7. Розчин згідно з одним з попередніх пунктів, який відрізняється тим, що додатково включає фульвінову кислоту.

8. Розчин згідно з пунктом 7, який відрізняється тим, що фульвінова кислота присутня у кінцевій концентрації від 0,1 до 10 % об.

9. Розчин згідно з одним з пп. 1-8, який відрізняється тим, що придатний для зміцнення сполучної тканини, кісток, шкіри, нігтів, артерій, хрящів та суглобів.

10. Розчин згідно з одним з пп. 1-8, який відрізняється тим, що придатний при лікуванні захворювань, пов'язаних з кістками, шкірою, артеріями, сполучною тканиною, хрящами, остеопорозом, ревматичними захворюваннями, артеріосклерозом, волоссям, нігтями та шкірними захворюваннями, серцево-судинними захворюваннями, алергічними захворюваннями, артритом та дегенеративними захворюваннями.

11. Спосіб одержання розчину згідно з одним з попередніх пунктів, в якому одну або декілька сполук кремнію та бору гідролізують у кислому розчині, що містить одну або більше розчинених добавок, що абсорбують воду.

12. Застосування розчину згідно з одним з пп. 1-8 у косметичі, терапевтичних кремах та мазях, шампунях або гелях.

13. Застосування розчину згідно з одним з пп. 1-8 для обробки трав'янистих рослин або дерев після його розведення.

(13) C2

(11) 80969

(19) UA

14. Застосування згідно з п. 13, яке **відрізняється** тим, що розчин розведений у 200-20000 разів перед нанесенням на трав'янисті рослини або дерева водою.

15. Застосування згідно з п. 13 або п. 14 яке **відрізняється** тим, що розчин використаний для зміцнення трав'янистих рослин або дерев, для підвищення їх стійкості проти однієї або більше з групи мікробних інфекцій, комах, шкідників, грибків або екстремальних фізичних умов.

16. Застосування згідно з одним з пп. 13-15, яке **відрізняється** тим, що розчин використаний у комбінації з мінералами, поживними речовинами, антимікробними агентами, інсектицидами, пестицидами, фунгіцидами, гербіцидами або їх комбінаціями.

17. Застосування згідно з одним з пп. 13-16, яке **відрізняється** тим, що розчин використаний для концентрування бору та кремнію в овочах та фруктах.

18. Застосування згідно з одним з пп. 13-17, яке **відрізняється** тим, що розчин нанесений шляхом розбризкування на трав'янисті рослини або дерева та/або їх листя або доданий до середовища, в якому розміщені корені трав'янистих рослин або дерев.

19. Застосування розчину згідно з одним з пп. 1-8 для внесення до місць утримання риби після його розведення.

20. Застосування згідно з п. 19, яке **відрізняється** тим, що розчин розведений у 1000-30000 разів перед внесенням до місць утримання риби.

21. Застосування згідно з одним з пп. 19 або 20, яке **відрізняється** тим, що розчин використаний для зміцнення риби та для підвищення її стійкості до мікробної інфекції.

22. Застосування згідно з одним з пп. 19-21, яке **відрізняється** тим, що розчин використаний у поєднанні з мінералами, поживними речовинами, антимікробними агентами або з їх комбінаціями.

23. Застосування розчину згідно з одним з пп. 1-8 для зміцнення сполучної тканини, кісток, шкіри, нігтів, артерій, хрящів та суглобів або при лікуванні захворювань, пов'язаних з кістками, шкірою, артеріями, сполучною тканиною, хрящами, суглобами, остеопорозом, ревматичними захворюваннями, артеріосклерозом, волоссям, нігтями та шкірними захворюваннями, серцево-судинними захворюваннями, алергічними захворюваннями, артритом та дегенеративними захворюваннями, у формі лікарського препарату.

24. Застосування розчину згідно з п. 9 або п. 10 як харчової добавки або допоміжної речовини.

Винахід відноситься до водних розчинів, які містять біодоступні кремній та бор, що можуть використовуватися для зміцнення трав'янистих рослин або дерев, або як корму або харчових добавок для людини та тварин. Винахід також відноситься до способів приготування стабільних розчинів, що містять біодоступні кремній та бор.

Кремній представляє собою суттєвий поживний елемент для рослин, він присутній у вигляді слабо концентрованої ортокремнієвої кислоти (H_2SiO_4) у ґрунті та у воді океанів. У сучасних сільськогосподарських системах розчини поживних речовин містять, головним чином, недостатню кількість ортокремнієвої кислоти, а силікати, що додаються, не здатні компенсувати цей дефіцит. Кремнієва кислота у деяких випадках включається у композиції поживних речовин, але при цьому не є в достатній мірі біодоступною як така, оскільки силікати є слабо розчинними у воді.

Силікати погано абсорбуються організмами. Звичайно, ортокремнієва кислота є кремнієвою сполукою з найвищою біодоступністю для діатомових водоростей, рослин, тварин та людини. У воді силікати та силікагелі повільно гідролізуються в ортокремнієву кислоту, яка є слабо розчинною, та швидко полімеризуються у маленькі частинки (неколоїдний матеріал (такий, що не викликає опалесценції, не мутний)). Такі полімеризовані структури безпосередньо агрегують у більш довгі ланцюги (все ще

неколоїдні), це приводить до утворення справжньої сітки (колоїдної; такої, що викликає опалесценцію, мутної). Цей процес приводить до утворення м'якого гелю, який є слабо біодоступним. Утворення цих колоїдів та гелів є залежним від значення рН. Більш тривалий час утворення гелю має місце при рН 2. При нижчих значеннях рН та більш лужних значеннях рН час утворення колоїдів та заключного утворення гелю зменшується [Iler RK. The Chemistry of Silica. Wiley: New York, 1979]. Згідно з цим посиланням стадії від мономера до золь-гелієвої полімеризації можуть бути впорядковані, як приведено нижче:

1. мономер ортокремнієвої кислоти у кислому середовищі;

2. полімеризація мономерів ортокремнієвої кислоти у маленькі олігомери (головним чином, димери, тримери та тетраметри, лінійні або циклічні);

3. подальша конденсація у лінійні або випадковим чином розгалужені полімери (маленькі частинки, +/- 2нм) (презоль);

4. збільшення розміру цих частинок (золь, колоїдний розчин, розмір частинок приблизно 5-100нм);

5. зв'язування частинок у ланцюги (агрегація, колоїд);

6. зв'язування з утворенням сітки та поширення у рідині (агрегація, прегель);

7. загуснення у гель (гель).

Згідно з літературними даними кремній допомагає зміцнювати корені рослин, а також є суттєвим для гарного росту рослин та збільшення стійкості до хвороб. Листя зміцнюється шляхом утворення кремнієвої кислоти, яка діє як механічний бар'єр. Кремній також зв'язує рослинні речовини, такі, як цукри, білки або фенольні сполуки, які є присутніми у всіх видах рослинних волокон. Міцелій грибів не може проникати у рослини будь-яким чином. Кремній підвищує врожай, індукує стійкість до стресу, сприяє боротьбі з шкідниками, знижує токсичність певних мінеральних речовин, таких, як магній або алюміній, збільшує толерантність до промерзання, регулює вміст води та покращує тургор листя, що приводить до покращення фотосинтезу. Було описано, що кремній всмоктується через корені як ортокремнієва кислота. Звичайно, використовуються силікати, кремнезем (кизельгель), метасилікати, цеоліти та інші кремнієві сполуки, проте вони мають низьку біодоступність.

Нові хімічні сполуки, які використовуються у сільському господарстві, також індукують полімеризацію та агрегацію ортокремнієвої кислоти у колоїди (наприклад, фториди, нітро- та хлоровані сполуки, інсектициди, антибіотики, фунгіциди, тощо). Таким чином, синергетична активність, що існує між коренями та мікроорганізмами та приводить до кращої біодоступності мінералів та розчинення силікатів, усувається або знижується, що, у свою чергу, приводить до одержання більш слабких рослин, які мають більш низький вміст мінеральних речовин. Для того, щоб вирішити цю проблему, рослини повинні одержувати більше добрив, ніж це необхідно, а також мають бути захищені від інсектицидів, фунгіцидів, тощо, у більшій мірі, ніж це необхідно. Це, зокрема, є проблемою для рослин, які вирощуються у гідрокультурі.

У доповнення до важливості кремнію для рослин, існує також підтвердження, що кремній є суттєвим елементом для тварин та людини [DE 19530882]. Це питання виникає у зв'язку з тим, що кремній також здатний захищати та зміцнювати тварин та людину стосовно проникнення патогенних мікроорганізмів (бактерій, грибів) та може безпосередньо бути пов'язаний з певними фізіологічними умовами. Людський організм містить дуже значну кількість кремнію, набагато більшу, ніж для більшості суттєвих мікроелементів, подібних Mn, Fe, Cu або Zn. Окремі органи, сполучні тканини, хрящі та кістки містять високі кількості кремнію. Деякі дослідження показують, що вміст кремнію зменшується з віком. Вагітні жінки мають низьку концентрацію кремнію у сироватці крові, а використання ними добавок, що містять кремній, продемонструвало терапевтичну дію на шкіру, при цьому також знижується токсичність алюмінію [Reffitt DM, Jugdaohsingh R, Thompson RPH, Powell J.J.]. Кремнієва кислота: її поглинання шлунково-кишковим трактом та виведення з сечею у людини та вплив на виведення алюмінію. J. Inorg. Biochem. 1999; 76: Van Dyck K., Van Cauwenbergh R., Robberecht H., Deelstra H.: Біодоступність кремнію з продуктів

харчування та харчових добавок. Fresenius J. Anal. Chem. 199; 363: 541-4]. Використання добавок кремнію також знижує токсичність алюмінію. Алюміній інгібує утворення кісток, а це корелює з неврологічними захворюваннями, подібними хворобі Паркінсона та хворобі Альцгеймера. Кремній пов'язаний з еластичністю артерій та стінок кровоносних судин, а також стимулює імунну систему.

Існують клінічні дослідження, що демонструють покращення при шкірних хворобах, серцевих хворобах, ревматичних хворобах, псоріазі, захворюваннях кісток, тощо, при використанні силікагелю. Силікагелі використовуються у всьому світі. Проте ці гелі є слабо біодоступними, що пов'язано з труднощами розчинення колоїдної кремнієвої кислоти.

Згідно з цим, для використання силікону ефективним біодоступним шляхом можна використовувати неколоїдний розчин орто-кремнієвої кислоти та можна запобігати утворенню колоїду та гелю. Проте, дуже складно інгібувати утворення колоїду та утворення гелю у високо концентрованих розчинах ($>10^{-4}$ мол Si) при всіх значеннях pH. Колоїди та гелі не є біодоступними, але колоїди повільно деполімеризуються у невеликі частинки та ортокремнієву кислоту. Така деполімеризація є обмеженою та не відрізняється високою відтворюваністю, оскільки ці колоїди є відносно нестабільними та їх полімеризація залежить від вмісту води, pH та концентрації солі. Це приводить до дуже низької концентрації ортокремнієвої кислоти, що включається у всі види біологічних матеріалів, у шлунково-кишковій системі та залишкових колоїдних матеріалах.

Майже як кремній, бор також вважається важливим мікроелементом. Бор представляє собою суттєвий елемент, важливість якого для рослин добре підтверджена. Нестача цього елемента приводить до інгібування росту [Ishii T., Matsunaga T., Hayashi N. Утворення рамногалактуронан II боратного димера у пектині визначає товщину клітинної стінки тканини гарбуза. U Plant Physiology; 126: (4) 1698 - 1705 Aug 2001], борна кислота відстрочує старіння квітів злакових рослин [Serrano M., Amoros A., Pretel MT, Martinez-Madrid MC, Romojaro F. Розчини для консервації, що містять борну кислоту, відстрочують старіння квітів злакових. Postharvest Biology and Technology; 23: (2) 133-142; Nov 2001]. Високі концентрації бору у воді забезпечують підвищення врожаю культур. Борна кислота використовується як фунгіцид, інсектицид при різних, але вищих концентраціях. Як гербіцид вона є сильною отрутою. Вона може виявляти свій вплив як сполука для десикації, або вона може інгібувати фотосинтез та пригнічувати водорості у басейнах та системах стічних вод. Як фунгіцид вона використовується як консервант для деревини. Борна кислота, таким чином, використовується у сільському господарстві та у галузях, відмінних від сільського господарства, зокрема, у продуктах харчування та у галузі переробки продуктів харчування.

Бор також використовується у людей для лікування ран, при інфекціях піхви, для

промивання очей, у косметичі та у продуктах харчування як консервант або антимікробна сполука, як слабкий антисептик. Вона також має протівірусну активність. Висока токсичність обмежує її використання як антимікробної сполуки для тварин та людини. До 1980 року бор вважався несуттєвим елементом у харчуванні людини. Нещодавно багаточисленні дослідження на тваринах та людині показали, що він також є суттєвим для нормального росту рослин, він також є важливим для утворення гормонів, які втягнені у метаболізм кісток (тестостерон та естроген). Він також втягнений у мінералізацію кісток.

У природі бор (подібно до кремнію) знайдений у джерелах вулканічної води та інших природних водах (мінеральних джерелах), а також у вигляді боратів у мінералах.

Комбінації кремнію та бору у харчових добавках або у лікарських засобах є відомими з літератури. Наприклад, у [DE 19530882] використовується лікарський засіб, що включає 21,43мас.% кремнію (з кремнезему) та 2,14мас.% (з бури). Цей лікарський засіб використовується як тверда речовина або як рідина. Значний недолік полягає у тому, що кремній не є біодоступним у такий спосіб. Інший документ [WO 00/27221] описує розчин для концентрації металів у рослинах, що містить принаймні 100мг/кг кремнію та принаймні 100мг/кг бору. У цьому випадку недоліком є те, що кремній не є біодоступним, або є важко біодоступним. Межі, в яких додають кремній та бор, можуть приводити до утворення композицій, які негативно впливають на біодоступність. Наприклад, у людей висока абсорбція кремнію може привести до утворення каменів та піску, до імунологічних впливів або до накопичення кремнію. Обидва ці елементи перешкоджають також поглинанню інших мінералів. Високе поглинання бору підвищує рівні тестостерону та естрогену та може перешкоджати функції гормону навколо щитовидної залози.

Борна та кремнієва кислоти є слабкими кислотами та слабо розчинні у воді. Вони є звичайними компонентами незабрудної води у всьому світі та є життєво необхідними для мінерального балансу рослин, тварин та людини. Усі ці кислоти є виснаженими у забруднених системах та їх біодоступність зменшується.

У літературі описані також комбінації, що не використовують кремній у його біодоступній формі та не використовують синергетичного впливу бору на біодоступність неколоїдного кремнію. Крім того, існує також потреба у розчині з високою концентрацією кремнієвої кислоти, що може використовуватися як матковий розчин, в якому кремнієва кислота присутня у неколоїдній формі, незважаючи на її високі концентрації та присутність бору.

Задачею винаходу є створення розчину, що має підвищену біодоступність та активність кремнію (у формі кремнієвої кислоти) у присутності бору (у формі борної кислоти) у цьому розчині. Іншою задачею винаходу є приготування високо концентрованого розчину кремнієвої кислоти, що не полімеризується та/або гелю, що може зберігатися як матковий розчин протягом

тривалого періоду часу при відсутності полімеризації з утворенням гелю такого розчину у комбінації з борною кислотою.

Даний винахід включає водний розчин борної кислоти та неколоїдної кремнієвої кислоти. Цей розчин також включає добавку, що абсорбує воду. Розчин містить біодоступний неколоїдний розчин кремнієвої кислоти, при цьому розчин є стабільним протягом періоду часу >1 року.

Винахід також включає спосіб приготування розчину, в якому одна або більше сполук кремнію та бору є гідролізованими у кислому середовищі, що містить одну або більше розчинених (в значній мірі) добавок, що абсорбують воду (гумектантів).

Винахід також включає застосування цього розчину, в якому, після розведення, розчин наносять на трав'янисті рослини або дерева для підвищення резистентності проти однієї або більше з групи мікробних інфекцій, комах, шкідників, грибів, бур'янів або екстремальних фізичних умов, або як корм для риби. Винахід також включає застосування розчину для застосування для зміцнення сполучних тканин, кісток, шкіри, нігтів, артерій, хрящів та суглобів у тварин та людини.

Було несподівано виявлено, що біодоступність композиції неколоїдної кремнієвої кислоти у комбінації з борною кислотою забезпечує підвищену біодоступність кремнієвої кислоти.

Ефекти, які були виявлені, були продемонстровані для однієї з цих слабких кислот, але тільки, коли вони використовуються у комбінації. Біологічні впливи додання кремнієвої кислоти набагато вищі у випадку, коли додається борна кислота. Таким чином, винахід включає водний розчин, що містить борну кислоту та неколоїдну кремнієву кислоту. Згідно з цим бор не може виконувати свою власну функцію, присутність бору також поліпшує функцію кремнієвої кислоти. Проте, ці впливи одержують тільки, коли слабкі кислоти використовуються разом, а кремнієва кислота не полімеризується у великі частинки.

Функція бору як синергетичного елементу у розчині з неколоїдною кремнієвою кислотою наявна тільки тоді, коли співвідношення бору до кремнію не є досить високим. Розчин згідно з даним винаходом має співвідношення кремнію та бору від 1 до 1000.

Оскільки кремнієва кислота для забезпечення біодоступності повинна бути присутня у неколоїдній формі, то утворення колоїдної кремнієвої кислоти слід уникати. Цього можна досягти шляхом вибору правильної концентрації, наприклад, концентрації нижче приблизно 10^{-4} моль Si. Розчин згідно з даним винаходом повинен фільтруватися через фільтр 0,1 мікрон, наприклад, мембранний фільтр. Здатний до фільтрування означає, що приблизно 90% або більше розчину проходить через фільтр. Коли концентрація є досить високою та утворюється колоїдна кремнієва кислота, частина розчину не буде проходити через фільтр.

У цьому розчині концентрації кремнієвої кислоти та бору у вигляді борної кислоти будуть складати від приблизно 0,0001 до 0,005мас.% та

0,000001 до 0,005мас.%, відповідно, переважно від приблизно 0,0001 до 0,01мас.% та 0,000001 до 0,01мас.%.

Розчин, як описано вище, не може мати високу концентрацію кремнієвої кислоти. Це може бути несприятливим при застосуванні такого розчину або при зберіганні такого розчину. Це означає, що необхідні великі об'єми. Зараз було несподівано виявлено, що комбінація кремнієвої кислоти, борної кислоти та сильної добавки, що абсорбує воду (гумектанта, який є здатним поглинати воду для утримання її в абсорбованому вигляді та для запобігання випаровуванню води), може вирішити цю проблему. У цьому втіленні розчин може включати високу концентрацію неколоїдної кремнієвої кислоти (наприклад, досягається 2мас.% концентрація Si), підтримує синергетичний ефект присутності борної кислоти, коли розчин також включає добавку, що абсорбує воду. Такий розчин буде мати низьке значення pH, нижче pH 2, та бажано нижче значення pH 1, наприклад 0,5. Таке низьке значення pH може бути досягнуто шляхом додання кислот, подібних HCl або H₃PO₄. Оскільки значення pH є дуже низьким (наприклад <1), вода та частинки будуть високо протонованими.

Були виявлені, головним чином, олігомери (невеликі частинки): димери, лінійні тримери, лінійні тетрамери, до гептаметрів, циклічні тримери, циклічні тетраметри, циклічні пентаметри та невеликі похідні цих циклічних та лінійних сполук. Такі невеликі сполуки (+/-, що мають розмір кілька нанометрів або менше) не збільшуються будь-яким чином при використанні сильного гумектанта, але при цьому інгібується їх агрегація та преципітація. Борна кислота абсорбує до цих невеликих частинок. Такі частинки легко проходять через фільтри 100 нанометрів, але їх проходження через молекулярне сито з нижчим розміром, ніж 10,000MW (Да), наприклад Amicon фільтр, є утрудненим.

Частинки золю, більші, ніж приблизно 4nm стають гетерогенними та колоїдними та не можуть проходити через фільтр 0,1 мікрон або, наприклад, фільтр 20,000MW. Оскільки невеликі "частинки", що є присутніми у розчині, легко проходять через фільтр 0,1 мікрон, природа препарату не може бути золем або гелем (неколоїдний, таким чином, незоль, негель). Крім того, практично не залишається ніяких частинок на фільтрі 20,000MW (або фільтрах, що мають більш високе відсікання), які не перешкоджають проходженню дуже маленьких частинок (подібних маленьким олігомерам та маленьким полімерам на стадії 2 та 3 (дивись нижче)). З іншого боку олігомери у нормі (після розведення) перебувають у рівновазі з ортокремнієвою кислотою при розчиненні. Розчинність кремнієвої кислоти обмежена концентрацією Si, нижчою, ніж 50 частинок на мільйон. Беручи до уваги ці результати, вважається що синтез неколоїдної кремнієвої кислоти приводить до стабілізації олігомерів кремнієвої кислоти з низькою молекулярною вагою, та що подальше утворення золю та гелю зупиняється шляхом стабілізації олігомера. Концентрація ортокремнієвої кислоти (мономери) у

концентрованому матковому розчині може вимірюватися за допомогою добре відомої реакції кремнієво-молібденової кислоти [R.K. Iler, 1979, p.95-105]. Застосування цього способу не показало позитивної реакції. Це означає, що матковий розчин згідно з винаходом представляє собою розчин, який включає олігомери стабілізованої кремнієвої кислоти (олігомерні частинки), які є меншими, ніж приблизно 4nm, та включає вільну ортокремнієву кислоту, яка не вимірюється. Такі стабілізовані олігомери кремнієвої кислоти не полімеризуються далі до колоїду (золь, агрегати) або гелю, та здатні до фільтрування через фільтр 0,1 мікрон або, наприклад, фільтр 20,000MW. Така форма кремнієвої кислоти у фазі 2 та 3 є біодоступною.

Проте розчин згідно з винаходом, що містить майже В, неколоїдний кремній, тобто, кремній, що переважно знаходиться на стадії 2 (полімеризація ортокремнієвої кислоти у маленькі олігомери (головним чином, димери, тримери та тетраметри, лінійні або циклічні) та стадії 3 (лінійні або випадковим чином розгалужені полімери (маленькі частинки, +/- 2nm) (презоль)), та ще менші кількості мономера ортокремнієвої кислоти, що не виявляються. Такий розчин проходить через фільтр 0,1 мікрон. Незважаючи на те, що може бути присутнім мономер (завдяки рівновазі), бажано, щоб була присутня кількість вільної ортокремнієвої кислоти, яка не вимірюється (реакція кремнієво-молібденової кислоти). Винахід не направлений на колоїдний кремній або кремній у вигляді золя. Колоїди включають частинки розміром приблизно від 5 до 100nm (Kirk-Orthmer, "Colloids"). Rompp описав у своїй Chemie Lexikon кремнієвий золь як водний аніонний розчин колоїдного аморфного SiO₂, що має частинки розміром 5-150nm. Не виключається, що незначні кількості таких видів є присутніми у розчині згідно з винаходом, але розчин за винаходом суттєво включає неколоїдний кремній (ортокремнієва кислота, що знаходиться, головним чином, на стадії 2 та стадії 3, як описано вище, при цьому ортокремнієва кислота представляє собою біодоступний кремній).

Біологічна активність розчину згідно з винаходом несподіваним чином досягається завдяки таким частинкам: маленьким олігомерам кремнієвої кислоти у комбінації з борною кислотою. Чиста кремнієва кислота має низьку активність. Гумектант забезпечує високу концентрацію кремнієвої кислоти (неколоїдного кремнію) та запобігає агрегації. Агрегація таких частинок приводить до опалесценції, мутності, слабого відбивання світла, утворення колоїду та гелю, та таким чином, до втрати біоактивності.

Допоміжну речовину переважно вибирають з групи харчових добавок (списку Е та А). Проте, розчин згідно з даним винаходом представляє собою розчин, в якому допоміжний агент, що абсорбує воду (гумектант) може бути полісорбатом, рослинною камеддю, заміщеною целюлозою, полігліцериновим естером жирних кислот, поліетиленгліколем, полідекстрозою, пропіленгліколем, альгінатом пропіленгліколю, естером поліоксиетиленгліколю, пектином або

амідованим пектином, естером цукрози та жирних кислот, ацетильованим крохмалем або гідроксипропіловим крохмалем, фосфати крохмалю, сечовиною, сорбітом, мальтитом, вітаміном, тощо або їх сумішшю. Сильний гумектант абсорбує воду та інгібує агрегацію кремнієвої кислоти у колоїди. Кремнієва кислота, що поглинається комплексом гумектант-вода, буде агрегувати.

Для того, щоб одержати високу концентрацію неколоїдної кремнієвої кислоти, необхідна висока концентрація допоміжного агенту, що абсорбує воду. Допоміжні агенти, що абсорбують воду у розчині згідно з винаходом, присутні в концентрації, принаймні, 30% (вага/об'єм, вага на об'єм для порошків та об./об. для рідин), бажано 40%. Такі розчини можуть не передбачуваним чином зберігатися як маткові розчини та при цьому зберігатися протягом тривалого періоду часу (>1 року) при кімнатній температурі перед розведенням та застосовуватися до рослин, тварин та людини. Таким чином, незважаючи на його високі концентрації та присутність бору, одержують розчин з високою концентрацією кремнієвої кислоти, що може використовуватися як матковий розчин, у якому кремнієва кислота присутня у неколоїдній біодоступній формі. Такий розчин має значення рН, що є нижчим 2, та бажано 1, він має співвідношення кремнію та бору від 0,1 до 1000 та здатний фільтруватися через фільтр 0,1 мікрон, тобто мембранний фільтр, при цьому вони також здатні проходити через фільтр 20,000MW (Да), наприклад фільтр Amicon.

Для таких концентрованих розчинів, що містять допоміжний агент, що поглинає воду (або комбінацію допоміжних речовин, що поглинають воду), концентрації обох елементів у формі кислот можуть приблизно складати від 0,01 до 2мас.% (Si) та від 0,0001 до 4мас.% (B), відповідно (1% дорівнює 10мг/мл).

Відомо, що В може також стабілізувати неколоїдний кремній. Проте, така стабілізація триває тільки протягом короткого періоду часу. Крім того, така стабілізація досягається тільки, коли кількість В набагато більша, ніж така у розчині згідно з винаходом (наприклад, принаймні, у 10 раз вище, ніж Si).

Борна, кремнієва, а також фульвінова кислоти (екстракт фульвінового матеріалу та гетерогенного матеріалу, що містить органічні слабкі кислоти та мінерали) є слабкими кислотами та є слабо розчинними у воді. При низьких концентраціях вони є загально поширеними у незабрудненій воді по всій Землі. Вони є життєво важливими для мінерального здоров'я рослин, тварин та людей. Ми виявили, що вибрані суміші цих кислот у складі рідких композицій при низьких концентраціях стимулюють нормальний стан здоров'я та можуть використовуватися як поживні речовини для запобігання деяких хвороб, а також як агенти, що спрямовані проти старіння. Таким чином, розчин згідно з даним винаходом може також включати у своєму специфічному втіленні фульвінову кислоту. У такому розчині фульвінова кислота є присутньою у заключній концентрації від 0,1 до 10% (об./об.)

Концентровані розчини, що подібні таким, які описані вище та включають неколоїдну кремнієву кислоту, борну кислоту (та необов'язково фульвінову кислоту) та допоміжний агент, що абсорбує воду, можуть бути приготовлені способом, за допомогою якого одна або більше сполук кремнію та бору гідролізуються у кислому розчині, що містить один або більше розчинених допоміжних агентів, які поглинають воду. Під час проведення цього способу допоміжний агент, що поглинає воду (гумектант) розчиняють у воді та додають сильну кислоту. При цьому необхідно внести або зберегти допоміжний агент, що поглинає воду (наприклад ПЕГ 400 або 600, поліетиленгліколь зі значенням MW 400 або 600, відповідно) перед додаванням кислоти при температурі 20°C. Потім розчин переносили в умови температури, що є вищою приблизно 20°C, але нижчою, ніж приблизно 40°C, наприклад, 25°C, та витримують при цій температурі протягом кількох годин, наприклад 5 годин, для кращої гідратації. Борну кислоту можна додавати, наприклад, у формі кристалічного матеріалу або боратів лужних або лужно-земельних металів. Бажано підкислити та повністю гідратувати допоміжні добавки, які абсорбують воду (гумектанти у вигляді рідини або у вигляді порошка, який змішується з водою), протягом деякого часу при температурі, наприклад, приблизно >20°C, перед додаванням кремнію. Потім додають кремній (наприклад, розчин силікату лужного або лужноземельного металу). Добрий результат може бути одержаний, наприклад, шляхом додавання однакового об'єму розведеного у п'ять або десять разів лужного розчину силікату калію (12-18% Si) у воді (вода повинна мати температуру приблизно >22°C), який додають до концентрованого розчину ПЕГ-борної кислоти дуже повільно при перемішуванні. Розчин підігрівають до температури 25°C для того, щоб повністю гідратувати гумектант (для запобігання преципітації кремнієвої кислоти). Це означає, що концентрація гумектанта спочатку складає, принаймні, 60%, бажано, принаймні, 80%, а після додавання розчину, що містить гумектант, заключна концентрація гумектанта складає, принаймні, 30%, бажано, принаймні, 40%.

Винахід також включає водний розчин дуже підкисленого допоміжного агента, що поглинає воду, та борної кислоти, що може поєднуватися з розчином кремнієвої кислоти, перед використанням. Після поєднання одержаний розчин можна розводити та застосовувати. Наприклад, розчин гумектант-бор поєднують перед використанням з розчином кремнієвої кислоти, а потім, наприклад, розводять або розпилюють на рослини. Для одержання комбінацій розчинів можливими є декілька комбінацій розчинів згідно з винаходом.

Одержаний розчин має високу концентрацію кремнію та може зберігатися без або суттєво без утворення колоїда протягом періоду часу, більшого, ніж один рік (матковий розчин). Завдяки низькому значенню рН розчини потрібно розводити перед використанням, так, щоб було досягнуто прийнятне значення рН. Це значення

буде залежати від застосування. Концентрований розчин згідно з даним винаходом може після розведення наноситися на трав'янисті рослини або дерева. Розчин розводять за допомогою води приблизно у 200 - 20,000 разів, бажано у 300 - 10,000 разів, та найбільш бажано у 500 - 3000 разів, перед нанесенням на трав'янисті рослини або дерева. Розведений розчин згідно з даним винаходом може використовуватися для зміцнення трав'янистих рослин або дерев, для підвищення їх стійкості проти мікробних інфекцій, комах, шкідників, грибів, або екстремальних умов, подібних до промерзання.

При цьому зрозуміло, що (концентрований) розчин, який наноситься на трав'янисті рослини або дерева, може також містити інші допоміжні агенти. Такі допоміжні агенти можуть, наприклад, додаватися до концентрованого маткового розчину. Спеціаліст у даній галузі при цьому вибирає прийнятний шлях. Допоміжні агенти представляють собою, наприклад, мінерали, поживні речовини, антимікробні агенти, інсектициди, пестициди, фунгіциди, гербіциди, тощо, або їх комбінацію. Бажано, коли ці допоміжні агенти суттєво не знижують розчинність кремнієвої кислоти у розчині або не поліпшують утворення колоїда. Проте, коли розчин згідно з винаходом (після розведення) використовується для обприскування, наприклад, плодів, то звичайно необхідна менша кількість фунгіцидів, тощо, щоб поліпшувати якість плодів.

Концентрований розчин згідно з даним винаходом може після розведення наноситися шляхом розбризкування на трав'янисті рослини або дерева та/або їх листя або шляхом додання розчину до середовища, в якому містяться коріння рослин. Як було описано вище, це буде поліпшувати стан трав'янистих рослин або дерев. Це також представляє собою шлях концентрування бору та кремнію, наприклад, в овочах та фруктах. Овочі та фрукти можуть потім використовуватися для споживання людиною.

Хороші результати можуть бути отримані, наприклад, на фруктах, подібних бананам, яблукам, винограду, грушам, тощо, на рисі, цибулі, картоплі, томатах, тощо, а також на квітах, тощо, з розчином, що містить концентрації Si приблизно від 0,1 до 1, бажано приблизно від 0,2 до 0,6мас.%, та концентрацію B приблизно від 0,01 до 0,5, бажано від при 0,05 до 0,2мас.%, а як гумектант ПЕГ 400 у кількості від приблизно 30 до 60, бажано від приблизно 35 до 50мас.%. рН цього розчину складає приблизно від приблизно 0,3 до 0,7, бажано від приблизно 0,4 до 0,6.

(Концентрований) розчин згідно з даним винаходом може також використовуватися після насичення у суперпоглиначах, подібних полікрилатам (полікрилату натрію або гомополіамінним кислотам, подібним поліаспартату, або природним матеріалам, подібних глинам або цеолітам, тощо). Суміші цих сполук разом з ґрунтовими субстратами можуть використовуватися як агенти для повільного вивільнення, наприклад, таких, що повільно вивільняють Si та B для рослин.

(Концентрований) розчин згідно з даним винаходом може також використовуватися після розведення для зміцнення риби (включаючи молюсків) та для збільшення їх стійкості проти мікробної інфекції. Розчин звичайно розводять приблизно у 1000 - 30000 разів, перед внесенням у місця утримання риб. Він може, наприклад, додаватися після розведення до басейну з рибою, так, що одержують прийнятну концентрацію кислот. Цей розчин може також використовуватися для концентрування бору та кремнію у водоростях.

Цей розчин може також використовуватися у поєднанні з мінералами, поживними речовинами, антимікробними агентами, або з їх комбінаціями. Ці допоміжні речовини можуть, наприклад, додаватися після розведення концентрованого розчину. Допоміжні речовини можуть також додаватися до концентрованого маткового розчину. Спеціаліст у даній галузі техніки буде вибирати прийнятний шлях.

(Концентрований) розчин згідно з даним винаходом може також використовуватися після розведення для людей та тварин для їх зміцнення, наприклад, сполучних тканин, кісток, шкіри, нігтів, артерій, хрящів та суглобів. Переваги для людини та тварин полягають як у біодоступності кремнію та бору та особливо у синергетичному ефекті підвищеної біодоступності кремнію завдяки присутності бору. Розчин після розведення може використовуватися для лікування хвороб, пов'язаних з кістками, шкірою, артеріями, сполучними тканинами, хрящами, суглобами, остеопорозом, ревматичними захворюваннями, артеросклерозом, захворюваннями волосся, нігтів та шкіри, кардіоваскулярними захворюваннями, алергічними захворюваннями, артритом, дегенеративними захворюваннями, тощо. Розчин може використовуватися у терапевтичній формі, що означає включення можливих фізіологічно прийнятних допоміжних агентів. Це може бути зроблено шляхом додання крапель нерозведеного або розведеного розчину до напоїв при використанні нерозведеного або розведеного розчину при приготуванні їжі як харчових добавок або як допоміжних речовин, та за допомогою інших способів, відомих спеціалістові у даній галузі. Розчин може також використовуватися у косметичі, у терапевтичних кремах та мазях, шампунях, гелях, тощо та у їх препаратах.

Заклучне розведення має бути таким, щоб досягти прийнятного значення рН. Це значення буде залежати від застосування. Розчин звичайно розводять водою приблизно у 10 - 500 разів перед споживанням. Якщо це є необхідним, то розведення може бути більшим або меншим. Якщо розведення розчину підвищує рН розчину, наприклад, у разі застосування, бажано, щоб значення рН не було вищим, ніж приблизно 4-6. Коли рН є вищим, ніж приблизно 6, то сприятливі ефекти зменшуються. Проте розчин буде в основному використовуватися при кислому значенні рН (нижче, ніж приблизно 6). Слабкі розведення (ті, що мають розведення приблизно <20 разів) можуть забезпечити менш стабільні розведені розчини, у той час більш сильно розведені розчини (ті, що мають розведення

більше, ніж у 500 або 1000 разів) можуть забезпечувати стабільні більш тривалий час розчини для застосування.

Крім того, споживання та/або частота застосування, наприклад, косметичних засобів, що включають (розведений) розчин згідно з даним винаходом, буде залежати від застосування. Загальне споживання людиною на день може складати приблизно від 0,5 до 10 мг Si на 50 кг ваги тіла (тварини та людини); у косметичних засобах концентрація може бути приблизно від 0,5 мг/мл до 0,0001 мг/мл Si.

В залежності від застосування (концентрований) розчин згідно з даним винаходом може містити допоміжні агенти, подібні смаковим агентам, підсолоджувальним агентам, консервантам, стабілізуювальним агентам, тощо. Ці добавки можуть, наприклад, додаватися після розведення концентрованого розчину та перед застосуванням. Але додаткові агенти можуть також додаватися до концентрованого маткового розчину. Спеціаліст у даній галузі буде при цьому вибирати прийнятний шлях. Бажано, коли ці додаткові агенти суттєво зменшують розчинність неколоїдної кремнієвої кислоти у розчині та не сприяють утворенню колоїдів або гелеутворенню. Спеціаліст у даній галузі буде також вибирати прийнятну міру розведення перед застосуванням.

Приклади

Експеримент 1: Вплив бору на токсичність кремнію

У наших експериментах на листя рослин салату (салат кочаний) розпилювали свіжо приготувані розчинні розчини ортокремнієвої кислоти та неколоїдного кремнію у концентрації 0,01% (мас/об.) Si у пропіленгліколі 5% (об./об.) кожного дня протягом двох тижнів. Силікат калію використовували як джерело Si. Розчини використовували зразу ж; не застосовували фільтрації. Ріст рослин повністю припинявся та рослини ставали дуже жорсткими. Додання 0,001% бору як борної кислоти до розчину кремнієвої кислоти зменшувало токсичність (ріст), але рослини продовжували залишатися дуже жорсткими. Контрольні експерименти тільки з 0,001% бору у 5% пропіленгліколі не продемонстрували ніякого ефекту (плацебо). Це свідчило про те, що борна кислота втягується у метаболізм кремнієвої кислоти та що співвідношення Si/B є важливим.

Експеримент 2: Антимікробна активність борної кислоти за відсутності кремнію. Готували розчини борної кислоти у воді, що містять різні концентрації борної кислоти: 1%, 0,1%, 0,03%, 0,01%, 0,005%, 0,0003% та 0,0001% (мас/об.). Силікат натрію (10% Si) розводили у десять разів водою та потім ще раз розводили у 1000 разів у розчинах або у воді з встановленням значення pH 4,5 після розведення, що приводило до одержання заключної концентрації кремнію 0,0010 мас.% (або 10 мг/мл Si).

Усі розчини фільтрували через мембранний фільтр 0,1 мкм. Одержували прозорі розчини. Розчини використовували зразу ж. Площі, засаджені картоплею використовували для тестування сполук на протидію інфекції

Phytophthora: 20 м² площі використовували для аналізу, при цьому кожний м² мав 6 рослин картоплі (сорт Bintje). Двічі на тиждень листя рослин обприскували за допомогою різних розчинів (приблизно 10 літрів/ар). Площу розміром чотири квадратні метри використовували як плацебо.

Результати:

Через +/- 2 місяці присутність інфекції Phytophthora виявлялася на листях рослин картоплі. Усі контрольні рослини показали зелені - чорні плями на листі та ставали слабко хлоротичними. Несподівано було виявлено, що усі рослини, оброблені бором, також були інфікованими, за винятком рослин, що були оброблені кремнієм (10 мг/мл) та низькою концентрацією борної кислоти, коли концентрація бору не була вищою за концентрацію кремнію.

Високо концентровані розчини бору у рівній мірі продемонстрували токсичні реакції (некротичний ефект на листях, такий, як чорні плями, дірки, тощо) через 1 тиждень після обробки рослин (1% та 0,1% та 0,03% борної кислоти), але не показали фунгіцидного ефекту. Тільки один кремній у деякій мірі гальмував грибову інфекцію. Усі рослини, оброблені кремнієм, були більш сильними (навіть при відсутності бору). При концентрації борної кислоти 0,003% листя рослин було більш сильним та зменшувалася грибова інфекція. Кращі результати показали приблизно 70%-не зменшення кількості інтоксикованих рослин.

Експеримент 3:

Розчини готували так, як описано в Експерименті 2:

- борна кислота 0,0003%, кремній 10 мг/мл (1)
- борна кислота 0,0001%, кремній 10 мг/мл (2)
- кремній 10 мг/мл (3)

Розчини зберігали при кімнатній температурі протягом 2 місяців, після цього проводили фільтрацію через мембранний фільтр 0,1 мкм (міліпоровий тип 0,1 микрон). Фільтрати двічі на тиждень застосовували у подальших експериментах як розчин для обприскування листя рослин картоплі (віком 3 місяці).

Результати:

Практично усі рослини продемонстрували нормальні некротичні ефекти при інфекції Phytophthora. При цьому також спостерігали зміцнення листя, подібно до Експерименту 2. Тільки розчин 2 показав деяке зменшення кількості плям у початковій фазі інфекції та деяке гальмування інфекції.

Результати показують, що активні сполуки у розчині не активувалися при утворенні колоїду через 2 місяці після приготування (оскільки розчини не були стабілізовані за допомогою гумектанта). Бор та кремній у низьких концентраціях показали синергетичний вплив на стійкість рослин до грибової інфекції. Бор діяв як кофактор для активності кремнію проти грибової інфекції. Поєднані кислоти у слабко кислому середовищі ефективно поглиналися через листя рослин.

Експеримент 4: активні частинки здатні до фільтрації на молекулярному фільтрі (не містять ортокремнієвої кислоти)

Розчини експерименту 2, що містять борну кислоту 0,0003% + кремній 10мкг/мл та тільки 10мкг/мл у воді, фільтрували (після мембранної фільтрації, 0,1 мікрон) через молекулярний фільтр, що відфільтровує частинки розміром 5000 дальтон (фільтр Amicon 5000 дальтон). Після цього приготування розчинів експерименту 2 повторювали. Обидва розчини показали надзвичайно знижену активність у порівнянні з подібними розчинами експерименту 1 без молекулярної фільтрації, що свідчило про те, що ортокремнієва кислота не чутлива до синергетичної активності обох сполук (кремнієва кислота не затримується фільтром).

Молекулярний фільтр пропускає невеликі частинки матеріалу, що відповідають за біологічну активність. Ортокремнієва кислота все ще присутня у розчині, але активність її зменшується. Це означає, що неколоїдний кремній у розчині згідно з винаходом, що проходить через фільтр 0,1 мікрон, але не через молекулярний фільтр, що відсікає частинки розміром 5000 дальтон, є формою неколоїдного кремнію, що може бути присутнім (разом з бором).

Експеримент 5: приготування маткових розчинів; аналіз стабільності у часі

Концентровані рідкі силкати натрію та калію використовували як вихідні матеріали (13%мас/об. Si як силікат; див. також Експеримент 7). Концентровані розчини спочатку розводили у 5-10 разів у різноманітних концентрованих гумектантах, підкислених до значення pH 0,5. Ці маткові розчини містили до 1% кремнію та до 0,1% бору. Тільки додання високо концентрованих гумектантів, таких, як нетоксичні харчові добавки, подібні полісорбатам, поліетиленгліколям, пропіленгліколю, сечовині, полідектрозі, сорбіту, тощо, приводить до одержання стабільних розчинів обох цих слабких кислот.

Усі ці гумектанти мають високу здатність до перемішування з різними видами силкатів або силанолів. Тільки сильні гумектанти (наприклад, такі, що поглинають воду приблизно у 0,5 разів, або більш сильні, ніж гліцерин) здатні до інгібування утворення колоїду або гелю кремнієвої кислоти протягом тривалого часу: більше 6 місяців при кімнатній температурі, все ще залишаються здатними проходити через фільтр 0,1 мікрон (= неколоїдний). Стабільність у часі для більше, ніж 100 сильних гумектантів та їх комбінацій, спостерігали протягом 3 тижнів при температурі 50°C (були вибрані 10 сильних гумектантів, використовували їх різні концентрації та комбінації). Було зроблено висновок, що концентрація гумектанту повинна бути, принаймні, 30%, бажано 40% у заключному підкисленому матковому розчині для інгібування утворення колоїду. Тільки з розчинами вибраних гумектантів одержували здатність фільтруватися через мембранний фільтр 0,1 мікрон без втрати швидкості витікання через фільтр через три тижні.

Приклади таких сильних абсорбуючих добавок представляють собою ПЕГ 200, ПЕГ 400,

ПЕГ 600, ПЕГ 800, пропіленгліколь, сечовину, декстрозу, полісорбат, сорбіт, галактозу, целюлозу, декстрин, рослинну камедь та їх комбінації. Більш низькі концентрації, ніж 30%мас/об., приводять до утворення колоїду та гелю через 3 місяці або навіть раніше у деяких випадках.

Біологічне випробування типу гумектантів:

Експеримент 6: Приготування маткових розчинів обох кислот: пошук на кращу стабілізацію активних частинок (неколоїдних) та біологічну активність

Для того, щоб використати економічно синергетичний ефект, вибирали дві рослини як протигрибкову модель: Lollo Bionda (салат) та White Lisbon (цибуля). В обох культурах використовували сильні протигрибкові сполуки для інгібування грибової інфекції (Botrytis), що приводило до пошкодження листя. Рослини культивували у відкритому ґрунті протягом березня-серпня, повністю без Botrytis після обробки за допомогою протигрибкових засобів. Жодна обробка не приводила до тяжкої інфекції. Ми замінювали протигрибкову обробку (обприскування один раз на тиждень) декількома розведеними матковими розчинами.

ПЕГ 400 та пропіленгліколь (Merck) у концентрації від 40% заключної (об./об.) використовували як тип гумектанту, при цьому використовували різні концентрації кремнієвої кислоти - борної кислоти, Si 6мг/мл; співвідношення Si/B коливалось від 1/1 до 1/300, усі ці розчини готували для застосування на двох типах рослин. Матковий розчин розводили у 1000 перед використанням. Найкращі результати щодо запобіжної протигрибкової активності та підвищення росту рослин були отримані при співвідношенні кремній/бор >1,5. Співвідношення може навіть бути розширене до 300 без втрати значної біологічної активності. Повністю несподіваним є те, що дуже низькі концентрації борної кислоти підвищують активність кремнієвої кислоти та діють як кофактори.

Експеримент 7: Приготування маткового розчину (що розводиться перед використанням)

5 літрів ПЕГ 600 (Merck) доводили до температури 20°C та додавали 300мл концентрованої HCl (спочатку розведеної за допомогою 300мл дистильованої води). Цей розчин підігрівали до температури 25°C та підтримували при цій температурі протягом приблизно 5 годин. Потім додавали 2 грами борної кислоти (кристалічної) та розчиняли її. Після цього повільно додавали 500мл концентрованого розчину силкату кремнію та розводили у 4,5 літрах дистильованої води при перемішуванні. Одержували розчин, що містив 0,6% Si та 0,2% борної кислоти (Si/B: 18), а заключне значення pH становило +/-0,4.

Контроль якості: неколоїдні розчини кремнієвої та борної кислот

Розчин повинен бути стабільним навіть через один рік після приготування при інкубуванні при кімнатній температурі. Для того, щоб виконати цю вимогу розчин має бути повністю освітленим (прозорим), не виявляти опалесценції або не мати

забарвлення, не демонструвати ефекту у нефелометрі (відбивання світла) та будуть здатні до фільтрації без зниження швидкості витікання через фільтр 0,1 мікрон після трьох місяців при температурі 50°C.

П'ятикратне розведення маткового розчину у фосфатному буфері pH 6,5 приводить до повного утворення гелю через 10 хвилин, показуючи, що досить високе значення pH негайно приводить до утворення гелю. Розчин тільки частково затримується на молекулярному фільтрі, що відсікає частинки розміром 5000 дальтон після розведення 1/10 у препаратах з ПЕГ 400 або пропіленгліколем.

Експеримент 8: Тест з пацієнтами

Були вибрані 10 добровольців (2 чоловіки, 8 жінок), що мають добрий стан здоров'я, не мають ніяких захворювань волосся, шкіри або нігтів, мають нормальне волосся та ріст нігтів. Кілька більш старших пацієнтів (30%) мали ревматичні ускладнення. Вони одержували (у невеликих пластикових пробірках на 50мл) розчин з ПЕГ 400 (дивися вище).

a матковий розчин з бором (0,03%мас/об. В) та кремній (0,5мас/об. Si)

b матковий розчин без бору

c матковий розчин без бору та кремнію

d матковий розчин без кремнію.

Усі пацієнти одержували будь-який з маткових розчинів послідовно для орального застосування у різному порядку. Кожний пацієнт приймав кожного дня та протягом 3 днів одну краплю (60мкл) для того, щоб оцінити швидкий біологічний ефект різних розчинів. Між застосуванням двох різних послідовних розчинів проводили період вимивання протягом одного тижня. Оцінку біологічної активності здійснювали на п'ятий день після початку специфічного лікування.

Висновок робили через 3 місяці споживання різних розчинів. Виявляли значний ефект на нігті та ріст волосся:

70% усіх пацієнтів були виявлені як такі, що не мали ефекту при споживанні розчину d (тільки бор),

80% усіх пацієнтів виявлені як такі, що не мали ефекту при споживанні розчину b (тільки кремній),

80% усіх пацієнтів виявлені як такі, що не мали ефекту при споживанні розчину c (плацебо),

90% усіх пацієнтів виявлені як такі, що виявляли значний ефект після споживання розчину a.

Несподівано в нашому експерименті було виявлено, що більшість пацієнтів (90%), які одержували синергетичну композицію, виявляли сильні ефекти вже через 5 днів. Ефекти, що були згадані, представляли собою: більш сильні нігті (90%), послаблення болю у шиї (10%), послаблення болю у коліні (10%). Послаблення болю у двох пацієнтів з ревматичними ускладненнями продовжувалося навіть протягом 5 днів та через 3 дні. 40% усіх пацієнтів виявляли також більш сильне волосся та ріст нігтів після завершення експерименту, а 50% пацієнтів зазначало, що зменшилося природне випадіння волосся після завершення лікування.

Добове споживання кремнію з водою та їжею складає приблизно 40-60мг/день, а бору приблизно 3-10мг/день, згідно з літературними даними споживання таких низьких концентрацій (1 крапля, що містить 0,5%мас./об. Si тільки) кремнієвої кислоти або борної кислоти окремо не буде сприяти швидкому біологічному ефекту. Тільки лікування за допомогою вищих концентрацій протягом кількох тижнів може сприяти деяким ефектам.

Ці результати показують, що короткий період перорального лікування тільки за допомогою синергетичної композиції сприяє безпосереднім біологічним впливам у пацієнтів (послаблення болю, сильні нігті), а також, що композиція, яка містить неколоїдну кремнієву кислоту - борну кислоту, є високо біодоступною для людини.

Експеримент 9: покращення стану нігтів при їх ламкості

Два пацієнти з ламкими нігтями одержували кожного дня 2 краплі (0,12мл, розведених у склянці мінеральної води) розчину (розчину a, експерименту 8) протягом одного тижня. Обидва пацієнти виявили значно сильніші нігті через принаймні 2 тижні після лікування.

Експеримент 9: зменшення випадіння волосся

Були вибрані два пацієнти, що мали проблеми з випадінням волосся (чоловіки, вік 48 та 57 років). Обидва одержували кожного дня по дві краплі розчину (розчин a, експеримент 8). Через один тиждень обидва пацієнти виявляли більше, ніж 50%, зниження випадіння волосся через один тиждень після завершення лікування.

Експеримент 10: збільшення росту волосся

Трьох жінок-пацієнток з тільки-но пофарбованим волоссям просили вимірювати швидкість росту їх волосся (волосся що тільки-но сформувалося) протягом двох місяців перед експериментом (контрольне значення). Після другого професіонального фарбування починали пероральне лікування за допомогою різних розчинів. Кожний пацієнт починав лікування у той самий день, в який проводилося фарбування. Кожний пацієнт приймав 2 краплі розчину a (експеримент 8). Через 60 днів проводили оцінку росту нового волосся. Усі пацієнти визначали більш довге волосся через 2 місяці. Значення швидкості росту для оброблених та необроблених пацієнтів складало 1,3 для трьох пацієнтів. Вони оцінювали ріст волосся протягом 6 місяців після фарбування кожні 2 місяці та вимірювали виросле волосся (значення у см вирослого волосся у трьох різних місцях). Вони також виявляли більш сильні нігті та більш швидкий ріст нігтів. Один пацієнт, що мав болі, пов'язані з грою в теніс, виявляв послаблення болю, а один пацієнт з плечовим тендинітом (хронічним), також виявляв послаблення болю.

Експеримент 11: вплив низьких доз на протидію грибковим інфекціям та на імунологічну систему Форелі у культурі

Гриби провокують вторинні інфекції у риби та вони можуть виникати головним чином, коли інші травми, такі, як пошкодження (рани) або хвороби створюють можливість для грибкової інфекції. Типовий приклад представляє собою Saprolegnia,

убіквітарний грибок, що є нормальним мешканцем у прісних водоймах. Ці грибки виявляють викликають хворобу у випадках недоїдання, стресу, шоків умов, паразитизму, низької концентрації кисню, утворення ран з бактеріальною інфекцією (пошкоджень). Риби розвивають білі борідки, що починаються з обох боків рота та поширюються по всьому тілу Форель є дуже чутливою до захворювання, спричиненого *Saprolegnia* або подібними грибами. Втрата є значною в озерах та рибних ставках та приводить до низької якості м'яса риби. Риба швидко покривається білими та сірими волокнистими плямами на шкірі.

Взагалі вважається, що інфекція вбиває риб, а м'ясо інфікованої риби не рекомендується споживати. Імунний статус риби, як вважається, є дуже важливим для розвитку захворювання. Лікування інфікованої риби є практично неможливим без використання дуже токсичних сполук.

Форель культивували у басейнах розміром 8×4×2 метри. 300 риб, що мають середню вагу 350 грамів, культивували протягом весни та літа. Температура води складала +/- 16°C, джерело води, концентрація кремнію <1мг/л, концентрація бору <1мг/л.

Звичайно улітку риба стає інфікованою грибами, інфекція починається з білих - сірих плям у куті рота та інфікованих відкритих ран завдяки типовому руху риб. Без фунгіцидної обробки риба стає тотально інфікованою за два місяці та помирає. З появою перших симптомів ми закривали постачання води та додавали розчин (розчин експерименту 7, але без ПЕГ 400) у розведенні 20,000. Заклучна концентрація Si та бору є надзвичайно низькою, тому безпосередній фунгіцидний ефект виключається. Період інкубації становив 2 дні. Джерело води знову відкривали після обробки. Обробку повторювали кожні три тижні. Усі риби виживали, а інфекція поступово повністю зникла через 3 місяці після обробки. Рибу виловлювали, її кулінарні властивості були відмінними.

Експеримент повторювали. Видаляли 10 контрольних риб з басейну та переносили у маленький басейн. На відміну до обробленої риби, необроблена риба ставала інфікованою та гинула.

Ці експерименти показують, що дуже високі розведення нашого розчину, який містить кремній та бор, здатні захищати рибу проти грибової інфекції, а також, що імунологічний статус риби відновлюється за допомогою обробки. Використання силікатів або інших мінеральних сполук окремо не приводить до такого самого захисту.

Експеримент 12: застосування розчину на яблуках сорту Gala та Royal Gala Fruit (Південна Африка)

Розчин, що містить приблизно 0,4мас.% Si, приблизно 0,1мас.% B та приблизно 45мас.% ПЕГ 400, що має рН приблизно 0,5, розводили приблизно у 800 разів перед використанням та застосовували до яблук сорту Gala та Royal Gala Fruit. Фрукти обробляли кожного тижня протягом

періоду 6 тижнів, розбризкуючи кожного тижня 350мл розчину на гектар.

Було узяті три зразки кожного типу фруктів. Результати представлені у наступній таблиці:

Зразок Дата	Зразок Ід. №	Розмір фруктів	Вага	Стійкість	Колір фруктів	Колір насіння
Gala						
15 січня	25970	62,2	108,3	12,1	1,0	1,0
	контроль	61,1	107,1	11,1	1,3	1,2
	Збільш./зменш.	1,1	1,2	1,0	-0,3	-0,2
21 січня	26076	65,5	140,3	12,4	1,1	1,0
	контроль	62,6	118,5	9,5	1,6	1,3
	Збільш./зменш.	2,9	21,8	2,9	-0,5	-0,3
28 січня	26362	68,8	151,7	12,8	1,2	1,1
	контроль	64,1	138,3	9,6	1,9	2,2
	Збільш./зменш.	4,7	13,4	3,2	-0,7	-1,1
Royal Gala						
14 січня	25832	60,6	107,7	10,9	1,0	1,0
	контроль	58,4	103,6	9,4	1,2	1,2
	Збільш./зменш.	2,2	4,1	1,5	-0,2	-0,2
21 січня	26074	64,5	138,2	11,2	1,1	1,0
	контроль	59,9	130,4	9,5	1,3	1,3
	Збільш./зменш.	4,6	7,8	1,7	-0,2	09,3
28 січня	26361	69,8	156,3	11,9	1,1	1,1
	контроль	60,1	131,8	9,6	1,6	1,4
	Збільш./зменш.	9,7	24,5	2,3	-0,5	-0,3

Виявилось, що через 6 тижнів розмір фруктів, вага, стійкість, колір, значення TSS (TSS = загальний вміст розчинних твердих речовин, що відноситься до вмісту цукру) та кількість крохмалю у всіх випадках були вищими, ніж такі для необроблених фруктів.

Експеримент 13: поліпшення якості фруктів (яблука Jonagold та груші Conference)

Яблука Jonagold та груші Conference обробляли тим самим шляхом, що описаний як експеримент 12, на дослідницькій станції Горсема в Бельгії. Оброблені та необроблені фрукти порівнювали, при цьому виявлялося, що оброблені яблука мали більше соку у плодах, мали значно насичений зелений колір. Крім того, виявилось, що не спостерігалось впливу на мінеральний склад фруктів.

Стосовно до груш виявилось, що та сторона фруктів, яка знаходиться у тіні, демонструє більш високий індекс рефракції у фруктів після обробки (це означає, що фрукти мають більш високу кількість цукру). Крім того, значення ваги фруктів та діаметр оброблених фруктів має тенденцію до підвищення. Крім того, виявилось, що не спостерігалось впливу на мінеральний склад фруктів.

Експеримент 14: зміцнення хризантем 'Vesurio Green'

У деяких квітів була забарвлена цвітніжка. Це веде до зниження періоду напівжиття квітів (зменшення приблизно від 40 днів (незабарвлені) до 27 днів (забарвлені)). Після цього забарвлені квіти мали збільшення окиснення листя (опік листя). Розчин (матковий), що містить приблизно 0,5мас.% Si, приблизно 0,1мас.% B та приблизно 45мас.% ПЕГ 400 та має рН 0,5, у 500 разів водопровідною водою. рН становило приблизно 6, а температура розчину складала приблизно 17°C. Використовували приблизно 1 літр для обприскування 20м² (50см³ розведеного розчину на м²), так, що квіти (гілки) покривали плівкою, видимою для ока. Після розпилення квіти не зрошувалися (водою або гербіцидами/пестицидами, тощо) протягом 24 годин. Протягом 7 тижнів, кожного тижня, через регулярні інтервали, 7 разів обприскували протягом періоду часу 4 години. Кожного разу готували свіжий розчин шляхом розведення концентрованого розчину (маткового).

Квіти оброблювали розчином згідно з винаходом (після розведення та розпилення розчину) показали сильне посилення споживання води та посилення забарвлення (у порівнянні з квітами, що оброблені водопровідною водою). Це можна пояснити більш регулярною структурою судинної системи, що приводить до меншого утруднення поглинання. Крім того, обробка приводить до більш тривалого періоду напівжиття.