

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第3部門第3区分

【発行日】平成20年5月22日(2008.5.22)

【公表番号】特表2006-514705(P2006-514705A)

【公表日】平成18年5月11日(2006.5.11)

【年通号数】公開・登録公報2006-018

【出願番号】特願2004-551944(P2004-551944)

【国際特許分類】

C 08 J	3/075	(2006.01)
A 61 K	38/00	(2006.01)
A 61 K	9/14	(2006.01)
A 61 K	47/32	(2006.01)
A 61 K	47/10	(2006.01)
A 61 K	47/12	(2006.01)
A 61 K	47/14	(2006.01)
A 61 P	35/00	(2006.01)
A 61 P	9/00	(2006.01)
A 61 P	11/00	(2006.01)
A 61 P	31/00	(2006.01)

【F I】

C 08 J	3/075	C E Y
A 61 K	37/02	Z N M
A 61 K	9/14	
A 61 K	47/32	
A 61 K	47/10	
A 61 K	47/12	
A 61 K	47/14	
A 61 P	35/00	
A 61 P	9/00	
A 61 P	11/00	
A 61 P	31/00	

【手続補正書】

【提出日】平成20年3月28日(2008.3.28)

【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

多數のヒドロゲル粒子を含み、各粒子が以下を含む形状維持性凝集体：

少なくとも一つのモノマーが一つまたは複数のヒドロキシル基および/または一つまたは複数のエーテル基を含む、一つまたは複数のモノマーを重合することにより得られる多數のポリマー鎖；

少なくとも一つの液体が一つまたは複数のヒドロキシル基を含む、10～90重量パーセントの一つまたは複数の吸収される液体であって、該ヒドロゲル粒子の中に吸収される液体；ならびに

10～90重量パーセントの一つまたは複数の吸収されない液体であって、吸収される液体

と同じまたは異なってもよく、そのうちの少なくとも一つが一つまたは複数のヒドロキシル基を含み、該凝集体の該ヒドロゲル粒子間の空間を占める、吸収されない液体。

【請求項 2】

凝集体がゴム状弾性(elastomeric)である、請求項1記載の形状維持性凝集体。

【請求項 3】

モノマーが、2-アルケン酸、ヒドロキシ(2C-4C)アルキル2-アルケノエート、ヒドロキシ(2C-4C)アルコキシ(2C-4C)アルキル2-アルケノエート、(1C-4C)アルコキシ(2C-4C)アルコキシ(2C-4C)アルキル2-アルケノエート、およびビニルエポキシ(1C-4C)アルキル2-アルケノエートからなる群より選択される、請求項1または2記載の形状維持性凝集体。

【請求項 4】

モノマーが、アクリル酸、メタクリル酸、2-ヒドロキシエチルアクリレート、2-ヒドロキシエチルメタクリレート、ジエチレングリコールモノアクリレート、ジエチレングリコールモノメタクリレート、2-ヒドロキシプロピルアクリレート、2-ヒドロキシプロピルメタクリレート、3-ヒドロキシプロピルアクリレート、3-ヒドロキシプロピルメタクリレート、ジプロピレングリコールモノアクリレート、ジプロピレングリコールモノメタクリレート、グリシジルメタクリレート、2,3-ジヒドロキシプロピルメタクリレート、グリシジルアクリレート、およびグリシジルメタクリレートからなる群より選択される、請求項2または3記載の形状維持性凝集体。

【請求項 5】

モノマーが、2-ヒドロキシエチルメタクリレート、3-ヒドロキシプロピルメタクリレート、またはそれらの組み合わせである、請求項1または2記載の形状維持性凝集体。

【請求項 6】

吸収される液体および吸収されない液体が、水、(1C-10C)アルコール、(2C-8C)ポリオール、(2C-8C)ポリオールの(1C-4C)アルキルエーテル、(2C-8C)ポリオールの(1C-4C)酸エステル、ヒドロキシ末端ポリエチレンオキシド、ポリアルキレングリコール、およびモノカルボン酸、ジカルボン酸、またはトリカルボン酸のヒドロキシ(2C-4C)アルキルエステルからなる群より独立して選択される、請求項1から5のいずれか一項記載の形状維持性凝集体。

【請求項 7】

吸収される液体および吸収されない液体が、水、メタノール、エタノール、イソプロピルアルコール、エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ポリエチレングリコール200~600、プロピレングリコール、ジプロピレングリコール、1,4-ブタンジオール、2,3-ブタンジオール、1,6-ヘキサンジオール、2,5-ヘキサンジオール、エチレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテル、メチルセロソルブエーテル、エチレングリコールモノアセテート、プロピレングリコールモノメチルエーテル、グリセリン、グリセロールモノアセテート、トリ(2-ヒドロキシエチル)シトレート、ジ(ヒドロキシプロピル)オキサレート、グリセリン、グリセリルモノアセテート、グリセリルジアセテート、およびグリセリルモノブチレートからなる群より独立して選択される、請求項6記載の形状維持性凝集体。

【請求項 8】

吸収される液体が水である、請求項1から6のいずれか一項記載の形状維持性凝集体。

【請求項 9】

吸収されない液体が水である、請求項1から6のいずれか一項記載の形状維持性凝集体。

【請求項 10】

吸収される液体および吸収されない液体が水である、請求項1から6のいずれか一項記載の形状維持性凝集体。

【請求項 11】

ヒドロゲル粒子が0.1モル%~15モル%の架橋剤を含む、請求項1から10のいずれか一項記載の形状維持性凝集体。

【請求項 12】

架橋剤が、エチレングリコールジアクリレート、エチレングリコールジメタクリレート、1,4-ジヒドロキシブタンジメタクリレート、ジエチレングリコールジメタクリレート、プロピレングリコールジメタクリレート、ジエチレングリコールジメタクリレート、ジプロピレングリコールジメタクリレート、ジエチレングリコールジアクリレート、ジプロピレングリコールジアクリレート、ジビニルベンゼン、ジビニルトルエン、酒石酸ジアリル、リンゴ酸ジアリル、酒石酸ジビニル、トリアリルメラミン、N,N'-メチレンビスアクリルアミド、マレイン酸ジアリル、ジビニルエーテル、1,3-ジアリル2-(2-ヒドロキシエチル)シトレート、クエン酸ビニルアリル、マレイン酸アリルビニル、イタコン酸ジアリル、イタコン酸ジ(2-ヒドロキシエチル)、ジビニルスルホン、ヘキサヒドロ-1,3,5-トリアリルトリアジン、亜リン酸トリアリル、ベンゼンホスホン酸ジアリル、アコニット酸トリアリル、シトラコン酸(citraconate)ジビニル、トリメチロールプロパントリメタクリレート、およびフマル酸ジアリルからなる群より選択される、請求項11記載の形状維持性凝集体。

【請求項13】

架橋剤が-ヒドロキシ酸エステルからなる群より選択される、請求項11記載の形状維持性凝集体。

【請求項14】

多数のヒドロゲル粒子が狭い多分散性を有する、請求項1から13のいずれか一項記載の形状維持性凝集体。

【請求項15】

ヒドロゲル粒子が帶電していないか、帶電しているか、またはその組み合わせである、請求項1から14のいずれか一項記載の形状維持性凝集体。

【請求項16】

多数のヒドロゲル粒子が、二つもしくはそれ以上の異なるサイズおよび/または二つもしくはそれ以上の異なる化学組成を有する粒子を含む、請求項1から15のいずれか一項記載の形状維持性凝集体。

【請求項17】

架橋されたポリマー鎖が約25,000から約2,000,000の平均分子量を有する、請求項1から16のいずれか一項記載の形状維持性凝集体。

【請求項18】

凝集体が分解性である、請求項1から17のいずれか一項記載の形状維持性凝集体。

【請求項19】

凝集体のヒドロゲル粒子が分解性である、請求項1から17のいずれか一項記載の形状維持性凝集体。

【請求項20】

ヒドロゲル粒子の平均直径が約1,000 nm未満である、請求項1から19のいずれか一項記載の形状維持性凝集体。

【請求項21】

少なくとも50重量パーセントのヒドロゲル粒子を含む形状維持性凝集体であって、各ヒドロゲル粒子が以下を含む形状維持性凝集体：

少なくとも一つのモノマーが一つまたは複数のヒドロキシル基および/または一つまたは複数のエーテル基を含む、一つまたは複数のモノマーを重合することにより得られる多数のポリマー鎖；

50体積%までの一つまたは複数の作動物質(working substance)；

少なくとも一つの液体が一つまたは複数のヒドロキシル基を含む、10~90重量パーセントの一つまたは複数の吸収される液体であって、該ヒドロゲル粒子の中に吸収される液体；ならびに

作動物質が吸収される液体中に溶解または懸濁されているか、または

作動物質が吸収されない液体中に溶解または懸濁されているか、または

一つまたは複数の作動物質が、吸収される液体中で溶解または懸濁されており、かつ

一つまたは複数の作動物質が吸収されない液体中に溶解または懸濁されている、

10~90重量パーセントの一つまたは複数の吸収されない液体であって、吸収される液体と同じまたは異なってもよく、そのうちの少なくとも一つが一つまたは複数のヒドロキシル基を含み、該凝集体の該ヒドロゲル粒子間の空間を占める、吸収されない液体。

【請求項 2 2】

凝集体がゴム状弾性(elastomeric)である、請求項21記載の形状維持性凝集体。

【請求項 2 3】

モノマーが、2-アルケン酸、ヒドロキシ(2C-4C)アルキル2-アルケノエート、ヒドロキシ(2C-4C)アルコキシ(2C-4C)アルキル2-アルケノエート、(1C-4C)アルコキシ(2C-4C)アルコキシ(2C-4C)アルキル2-アルケノエート、およびビニルエポキシ(1C-4C)アルキル2-アルケノエートからなる群より選択される、請求項21または22記載の形状維持性凝集体。

【請求項 2 4】

モノマーが、アクリル酸、メタクリル酸、2-ヒドロキシエチルアクリレート、2-ヒドロキシエチルメタクリレート、ジエチレングリコールモノアクリレート、ジエチレングリコールモノメタクリレート、2-ヒドロキシプロピルアクリレート、2-ヒドロキシプロピルメタクリレート、3-ヒドロキシプロピルアクリレート、3-ヒドロキシプロピルメタクリレート、ジプロピレングリコールモノアクリレート、ジプロピレングリコールモノメタクリレート、グリシジルメタクリレート、2,3-ジヒドロキシプロピルメタクリレート、グリシジルアクリレート、およびグリシジルメタクリレートからなる群より選択される、請求項22または23記載の形状維持性凝集体。

【請求項 2 5】

モノマーが、2-ヒドロキシエチルメタクリレート、3-ヒドロキシプロピルメタクリレート、またはそれらの組み合わせである、請求項21または22記載の形状維持性凝集体。

【請求項 2 6】

吸収される液体および吸収されない液体が、水、(1C-10C)アルコール、(2C-8C)ポリオール、(2C-8C)ポリオールの(1C-4C)アルキルエーテル、(2C-8C)ポリオールの(1C-4C)酸エステル、ヒドロキシ末端ポリエチレンオキシド、ポリアルキレングリコール、およびモノカルボン酸、ジカルボン酸、またはトリカルボン酸のヒドロキシ(2C-4C)アルキルエステルからなる群より独立して選択される、請求項21から25のいずれか一項記載の形状維持性凝集体。

【請求項 2 7】

吸収される液体および吸収されない液体が、水、メタノール、エタノール、イソプロピルアルコール、エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ポリエチレングリコール200~600、プロピレングリコール、ジプロピレングリコール、1,4-ブタンジオール、2,3-ブタンジオール、1,6-ヘキサンジオール、2,5-ヘキサンジオール、エチレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテル、メチルセロソルブエーテル、エチレングリコールモノアセテート、プロピレングリコールモノメチルエーテル、グリセリン、グリセロールモノアセテート、トリ(2-ヒドロキシエチル)シトарат、ジ(ヒドロキシプロピル)オキサレート、グリセリン、グリセリルモノアセテート、グリセリルジアセテート、およびグリセリルモノブチレートからなる群より独立して選択される、請求項26記載の形状維持性凝集体。

【請求項 2 8】

吸収される液体が水である、請求項21から27のいずれか一項記載の形状維持性凝集体。

【請求項 2 9】

吸収されない液体が水である、請求項21から28のいずれか一項記載の形状維持性凝集体。

【請求項 3 0】

吸収される液体および吸収されない液体が水である、請求項21から29のいずれか一項記載の形状維持性凝集体。

【請求項 3 1】

ヒドロゲル粒子が0.1モル%～15モル%の架橋剤を含む、請求項21から30のいずれか一項記載の形状維持性凝集体。

【請求項32】

架橋剤が、エチレングリコールジアクリレート、エチレングリコールジメタクリレート、1,4-ジヒドロキシブタンジメタクリレート、ジエチレングリコールジメタクリレート、プロピレングリコールジメタクリレート、ジエチレングリコールジメタクリレート、ジプロピレングリコールジメタクリレート、ジエチレングリコールジアクリレート、ジプロピレングリコールジアクリレート、ジビニルベンゼン、ジビニルトルエン、酒石酸ジアリル、リンゴ酸ジアリル、酒石酸ジビニル、トリアリルメラミン、N,N'-メチレンビスアクリルアミド、マレイン酸ジアリル、ジビニルエーテル、1,3-ジアリル2-(2-ヒドロキシエチル)シトарат、クエン酸ビニルアリル、マレイン酸アリルビニル、イタコン酸ジアリル、イタコン酸ジ(2-ヒドロキシエチル)、ジビニルスルホン、ヘキサヒドロ-1,3,5-トリアリルトリアジン、亜リン酸トリアリル、ベンゼンホスホン酸ジアリル、アコニット酸トリアリル、シトラコン酸ジビニル、トリメチロールプロパントリメタクリレート、およびマル酸ジアリルからなる群より選択される、請求項31記載の形状維持性凝集体。

【請求項33】

架橋剤が-ヒドロキシ酸エステルからなる群より選択される、請求項31記載の形状維持性凝集体。

【請求項34】

多数のヒドロゲル粒子が狭い多分散性を有する、請求項21から33のいずれか一項記載の形状維持性凝集体。

【請求項35】

ヒドロゲル粒子が帶電していないか、帶電しているか、またはその組み合わせである、請求項21から34のいずれか一項記載の形状維持性凝集体。

【請求項36】

多数のヒドロゲル粒子が、二つもしくはそれ以上の異なるサイズおよび/または二つもしくはそれ以上の異なる化学組成を有する粒子を含む、請求項21から35のいずれか一項記載の形状維持性凝集体。

【請求項37】

架橋されたポリマー鎖が約25,000から約2,000,000の平均分子量を有する、請求項21から36のいずれか一項記載の形状維持性凝集体。

【請求項38】

凝集体が分解性である、請求項21から38のいずれか一項記載の形状維持性凝集体。

【請求項39】

凝集体のヒドロゲル粒子が分解性である、請求項21から38のいずれか一項記載の形状維持性凝集体。

【請求項40】

作動物質が一つまたは複数の金属またはその合金を含む、請求項21から39のいずれか一項記載の形状維持性凝集体。

【請求項41】

作動物質が一つまたは複数の酸化状態を個々に有する一つまたは複数の金属を含む、請求項21から39のいずれか一項記載の形状維持性凝集体。

【請求項42】

作動物質が一つまたは複数の半導体元素または半導体化合物を含む、請求項21から39のいずれか一項記載の形状維持性凝集体。

【請求項43】

作動物質が一つまたは複数の薬剤を含む、請求項21から39のいずれか一項記載の形状維持性凝集体。

【請求項44】

作動物質が一つまたは複数の薬学的に許容される賦形剤をさらに含む、請求項21から43

のいずれか一項記載の形状維持性凝集体。

【請求項 4 5】

薬剤がペプチドまたはタンパク質である、請求項43記載の形状維持性凝集体。

【請求項 4 6】

一つまたは複数の薬剤が癌の治療に役立つ、請求項43記載の形状維持性凝集体。

【請求項 4 7】

一つまたは複数の薬剤が冠状動脈疾患の治療に役立つ、請求項43記載の形状維持性凝集体。

【請求項 4 8】

一つまたは複数の薬剤が呼吸器疾患の治療に役立つ、請求項43記載の形状維持性凝集体。

【請求項 4 9】

一つまたは複数の薬剤が感染症の治療に役立つ、請求項43記載の形状維持性凝集体。

【請求項 5 0】

ヒドロゲル粒子の平均直径が約1,000 nm未満である、請求項21から49のいずれか一項記載の形状維持性凝集体。

【請求項 5 1】

以下の工程を含む、ヒドロゲル粒子の形状維持性凝集体を調製する方法：

少なくとも一つのモノマーが一つまたは複数のヒドロキシル基および/または一つまたは複数のエーテル基を含む、一つまたは複数のモノマーを、少なくとも一つの液体が一つまたは複数のヒドロキシル基を含む、一つまたは複数の液体に添加する工程；

0.01モル%～10モル%の界面活性剤を該液体に添加する工程；

該モノマーを重合し、多数のポリマー鎖および10%から90%の吸収される液体を含むヒドロゲル粒子の懸濁液を該液体中に形成する工程；

形状維持性凝集体が形成されるまで、吸収されない液体を除去する工程。

【請求項 5 2】

該溶液中に一つまたは複数の作動物質を溶解または懸濁させる工程をさらに含む、請求項51の方法。

【請求項 5 3】

モノマーの重合の後に、残存している吸収されない液体に作動物質を溶解または懸濁させて、作動物質を含む10重量%から90重量%の吸収されない液体、および作動物質を含まない10重量%から90重量%の吸収される液体を含むヒドロゲル粒子を含む、形状維持性凝集体を生じる、請求項52記載の方法。

【請求項 5 4】

モノマーの重合の前に、液体に作動物質を溶解または懸濁させて、作動物質を含む10重量%から90重量%の吸収されない液体、および作動物質を含む10重量%から90重量%の吸収される液体を含むヒドロゲル粒子を含む、形状維持性凝集体を生じる、請求項52記載の方法。

【請求項 5 5】

重合後および吸収されない液体を除去して形状維持性凝集体を形成させる前に、作動物質を該吸収されない液体から除去して、作動物質を含まない10重量%から90重量%の吸収されない液体、および作動物質を含む10重量%から90重量%の吸収される液体を含むヒドロゲル粒子を含む、形状維持性凝集体を生じる、請求項52記載の方法。

【請求項 5 6】

形状維持性凝集体をゴム状弾性にするモノマーを用いる、請求項51から55のいずれか一項記載の方法。

【請求項 5 7】

2-アルケン酸、ヒドロキシ(2C-4C)アルキル2-アルケノエート、ヒドロキシ(2C-4C)アルコキシ(2C-4C)アルキル2-アルケノエート、(1C-4C)アルコキシ(2C-4C)アルコキシ(2C-4C)アルキル2-アルケノエート、およびビニルエポキシ(1C-4C)アルキル2-アルケノエート

からなる群より選択されるモノマーを用いる工程を含む、請求項51から56のいずれか一項記載の方法。

【請求項 5 8】

アクリル酸、メタクリル酸、2-ヒドロキシエチルアクリレート、2-ヒドロキシエチルメタクリレート、ジエチレングリコールモノアクリレート、ジエチレングリコールモノメタクリレート、2-ヒドロキシプロピルアクリレート、2-ヒドロキシプロピルメタクリレート、3-ヒドロキシプロピルアクリレート、3-ヒドロキシプロピルメタクリレート、ジプロピレングリコールモノアクリレート、ジプロピレングリコールモノメタクリレート、グリシルメタクリレート、2,3-ジヒドロキシプロピルメタクリレート、グリシジルアクリレート、およびグリシジルメタクリレートからなる群より選択されるモノマーを用いる工程を含む、請求項51または52記載の方法。

【請求項 5 9】

モノマーとして、2-ヒドロキシエチルメタクリレート、3-ヒドロキシプロピルメタクリレート、またはその組み合わせを用いる工程を含む、請求項51または52記載の方法。

【請求項 6 0】

吸収される液体および吸収されない液体が、水、(1C-10C)アルコール、(2C-8C)ポリオール、(2C-8C)ポリオールの(1C-4C)アルキルエーテル、(2C-8C)ポリオールの(1C-4C)酸エステル、ヒドロキシ末端ポリエチレンオキシド、ポリアルキレングリコール、およびモノカルボン酸、ジカルボン酸、またはトリカルボン酸のヒドロキシ(2C-4C)アルキルエステルからなる群より独立して選択される、請求項51から59のいずれか一項記載の方法。

【請求項 6 1】

吸収される液体および吸収されない液体が、水、メタノール、エタノール、イソプロピルアルコール、エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ポリエチレングリコール200~600、プロピレングリコール、ジプロピレングリコール、1,4-ブタンジオール、2,3-ブタンジオール、1,6-ヘキサンジオール、2,5-ヘキサンジオール、エチレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテル、メチルセロソルブエーテル、エチレングリコールモノアセテート、プロピレングリコールモノメチルエーテル、グリセリン、グリセロールモノアセテート、トリ(2-ヒドロキシエチル)シトарат、ジ(ヒドロキシプロピル)オキサレート、グリセリン、グリセリルモノアセテート、グリセリルジアセテート、およびグリセリルモノブチレートからなる群より独立して選択される、請求項51から59のいずれか一項記載の方法。

【請求項 6 2】

吸収される液体が水である、請求項51から61のいずれか一項記載の方法。

【請求項 6 3】

吸収されない液体が水である、請求項51から61のいずれか一項記載の方法。

【請求項 6 4】

吸収される液体および吸収されない液体が水である、請求項51から61のいずれか一項記載の方法。

【請求項 6 5】

重合前に0.1モル%から15モル%の架橋剤を液体に添加する工程を含む、請求項51から64のいずれか一項記載の方法。

【請求項 6 6】

架橋剤が、エチレングリコールジアクリレート、エチレングリコールジメタクリレート、1,4-ジヒドロキシブタンジメタクリレート、ジエチレングリコールジメタクリレート、プロピレングリコールジメタクリレート、ジエチレングリコールジメタクリレート、ジプロピレングリコールジメタクリレート、ジエチレングリコールジアクリレート、ジプロピレングリコールジアクリレート、ジビニルベンゼン、ジビニルトルエン、酒石酸ジアリル、リンゴ酸ジアリル、酒石酸ジビニル、トリアリルメラミン、N,N'-メチレンビスアクリルアミド、マレイン酸ジアリル、ジビニルエーテル、1,3-ジアリル2-(2-ヒドロキシエチル)シトарат、クエン酸ビニルアリル、マレイン酸アリルビニル、イタコン酸ジアリル

、イタコン酸ジ(2-ヒドロキシエチル)、ジビニルスルホン、ヘキサヒドロ-1,3,5-トリアリルトリアジン、亜リン酸トリアリル、ベンゼンホスホン酸ジアリル、アコニット酸トリアリル、シトラコン酸ジビニル、トリメチロールプロパントリメタクリレート、およびフマル酸ジアリルからなる群より選択される、請求項65記載の方法。

【請求項 67】

架橋剤が -ヒドロキシ酸エステルからなる群より選択される、請求項65記載の方法。

【請求項 68】

多数のヒドロゲル粒子が狭い多分散性を有する、請求項51から67のいずれか一項記載の方法。

【請求項 69】

ヒドロゲル粒子が帶電していないか、帶電しているか、またはその組み合わせである、請求項51から68のいずれか一項記載の方法。

【請求項 70】

多数のヒドロゲル粒子が、二つもしくはそれ以上の異なるサイズおよび/または二つもしくはそれ以上の異なる化学組成を有する粒子を含む、請求項51から69のいずれか一項記載の方法。

【請求項 71】

架橋されたポリマー鎖が約25,000～約2,000,000の平均分子量を有する、請求項51から70のいずれか一項記載の方法。

【請求項 72】

凝集体が分解性である、請求項51から71のいずれか一項記載の方法。

【請求項 73】

凝集体のヒドロゲル粒子が分解性である、請求項51から72のいずれか一項記載の方法。

【請求項 74】

ヒドロゲル粒子の平均直径が約1,000 nm未満である、請求項51から73のいずれか一項記載の方法。

【請求項 75】

請求項51から74のいずれか一項記載の方法により調製される形状維持性ヒドロゲル凝集体。

【請求項 76】

医薬の製造における、請求項1から50または75のいずれか一項記載の形状維持性ヒドロゲル凝集体の使用。