

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2010 年 5 月 14 日(14.05.2010)

PCT

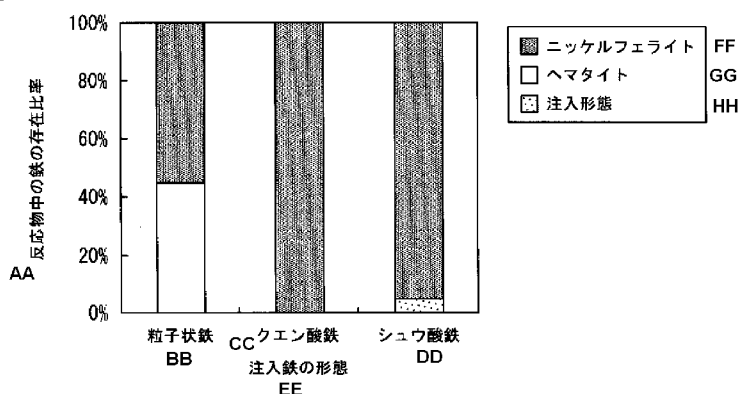
(10) 国際公開番号
WO 2010/053079 A1

- (51) 国際特許分類:
G21D 3/08 (2006.01) G21D 1/00 (2006.01)
G21C 19/307 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2009/068792
- (22) 国際出願日: 2009 年 11 月 4 日(04.11.2009)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2008-283517 2008 年 11 月 4 日(04.11.2008) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 株式会社 東芝 (KABUSHIKI KAISHA TOSHIBA) [JP/JP]; 〒1058001 東京都港区芝浦一丁目 1 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人 (米国についてののみ): 矢板 由美 (YAITA, Yumi). 山本 誠二 (YAMAMOTO, Seiji). 平沢 肇 (HIRASAWA, Hajime). 間間 裕 (URUMA, Yutaka).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))
- (74) 代理人: 波多野 久, 外 (HATANO, Hisashi et al.); 〒1050003 東京都港区西新橋一丁目 1 7 番 1 6 号 宮田ビル 2 階東京国際特許事務所 Tokyo (JP).

(54) Title: METHOD FOR REDUCING RADIATION EXPOSURE

(54) 発明の名称: 放射線被ばく低減方法

[図3]



AA RATIO OF PRESENCE OF IRON IN REACTANT
BB PARTICULATE IRON
CC IRON CITRATE
DD IRON OXALATE
EE FORM OF IRON TO BE INJECTED
FF NICKEL FERRITE
GG HEMATITE
HH FORM OF INJECTION

(57) Abstract: A method for reducing radiation exposure which reduces the amount of radiation around a reactor cooling system by injecting iron into a coolant that flows from the reactor cooling system toward the reactor core in a nuclear power plant, and ferritizing and fixing radionuclides or parent nuclides thereof, that are contained in the coolant, on the surface of a reactor core structure, wherein iron citrate that is soluble organic acid iron, or iron oxalate or iron fumarate that has a particle diameter of 3 μm or less, is used as the iron to be injected into the coolant.

(57) 要約: 原子力発電プラントの原子炉冷却系から炉心に向かって流れる冷却材に鉄を注入し、冷却材に含まれる放射性核種或いはその親核種を炉心構造物の表面でフェライト化し固着させることで原子炉冷却系周囲の放射線量を抑える放射線被ばく低減方法において、冷却材に注入する鉄として、溶解性の有機酸鉄であるクエン酸鉄或いは 3 μm 以下の粒径を有す

る有機酸鉄シュウ酸鉄またはフマル酸鉄を用いるようにした。

明 細 書

発明の名称 : 放射線被ばく低減方法

技術分野

[0001] 本発明は、原子力発電プラントにて原子炉冷却系周囲の放射線量を抑えることによりプラント検査等に際して作業者が受ける被ばく線量を低減する放射線被ばく低減技術に係り、特に、原子炉冷却系から冷却材に鉄を注入し、冷却材に含まれる放射性核種或いはその親核種を炉心構造物の表面でフェライト化し固着させることで原子炉冷却系周囲の放射線量を抑える放射線被ばく低減方法に関する。

背景技術

[0002] 原子力発電プラントでは、ステンレス鋼やニッケル基合金などの金属材料が炉心や原子炉冷却系などの構造材料として用いられている。これら金属材料の成分元素の中には、炉心で発生する中性子を受けて放射性核種となるものがある。たとえば、ニッケル58は、式(1)に示す核反応により放射性のコバルト58となり、コバルト59は、式(2)に示す核反応により放射性のコバルト60となる。

[0003] $^{58}\text{Ni} (n, p) ^{58}\text{Co} \dots\dots(1)$

$^{59}\text{Co} (n, \gamma) ^{60}\text{Co} \dots\dots(2)$

炉心で生成した放射性核種は、冷却材（水）の流れに沿って移行し、原子炉冷却系を成す機器や配管に付着する。この原子炉冷却系の機器・配管における放射性核種、特に、高エネルギーのガンマ線を放出するコバルト60／58は、プラント検査等に際して作業者が受ける放射線の主たる線源となる。

[0004] 作業者の被ばく線量を低減するには、原子炉冷却系を流れる冷却材のコバルトやその親核種であるニッケルの濃度を低減することが重要である。冷却材のニッケル濃度やコバルト濃度を低減するには、冷却材に鉄を注入し、冷却材に含まれるニッケルやコバルトを燃料被覆管の表面でフェライト化し固

着させる方法が有効である。その理由は、燃料被覆管の表面は炉心構造物の中でも圧倒的に大きな表面積を有していること、燃料被覆管表面では沸騰濃縮の作用によりニッケルやコバルトのフェライト化が進行しやすいことによる。

[0005] 従来、以下に列挙する放射線被ばく低減技術が提案されている。

[0006] (1) 冷却材に鉄イオンを注入し、冷却材に含まれるニッケルやコバルトを燃料被覆管の表面でフェライト化し固着させることで原子炉冷却系周囲の放射線量を抑えるようにした技術。（特開 2000-9889 号公報：特許文献 1 参照）。

[0007] (2) 冷却材に鉄イオンを介して得られた鉄酸化物を注入し、冷却材に含まれるニッケルやコバルトを燃料被覆管の表面でフェライト化し固着させることで原子炉冷却系周囲の放射線量を抑えるようにした技術（特開平 5-288893 号公報：特許文献 2 参照）。

[0008] (3) 冷却材に鉄酸化物を注入し、冷却材に含まれるニッケルやコバルトを燃料被覆管の表面でフェライト化し固着させることで原子炉冷却系周囲の放射線量を抑えるようにした技術（特開平 7-20277 号公報：特許文献 3 参照）。

[0009] (4) 原子炉冷却系の復水濾過器で捕集された金属酸化物（クラッド）を炉心に再注入し、冷却材に含まれるニッケルやコバルトを燃料被覆管の表面でフェライト化し固着させることで原子炉冷却系周囲の放射線量を抑えるようにした技術（特開昭 63-229394 号公報：特許文献 4 参照）。

[0010] 上記特許文献 1 より、鉄イオンは、電解操作で得られることが知られているが、鉄イオンの生成速度は、電極間の電圧や電極表面の状態に依存して刻々変動する。このため、原子炉冷却系の冷却材に鉄を均一流量で供給することは容易でなく、冷却材鉄濃度を制御し難い。また、電解操作は、電極表面に生成した酸化皮膜を除去するための機械的洗浄が必要になるなど、装置の取り扱い負荷が大きい。

[0011] 一方、鉄酸化物は、鉄イオンと比較して冷却材中のニッケルやコバルトと

の反応性が良くないため、冷却材に注入した鉄酸化物が炉心に到達してもニッケルやコバルトの良好なフェライト化が期待できない。なお、鉄酸化物を大量に注入すれば、ニッケルやコバルトを良好にフェライト化できるが、冷却材の鉄過剰状態は、プラント運転上好ましいものではない。

[0012] 発明の開示

本発明は上記事情に鑑みてなされたもので、原子力発電プラントにて原子炉冷却系周囲の放射線量を抑えることによりプラント検査等に際して作業者が受ける被ばく線量を低減する放射線被ばく低減技術において、注入鉄によりニッケルやコバルトが燃料被覆管表面にて良好にフェライト化し固着すると共に、冷却材鉄濃度の制御が容易となり且つ鉄の注入に用いる装置の取り扱い負荷も低減できる放射線被ばく低減方法を提供することを目的とする。

[0013] 上述した目的を達成するため、本発明の一実施例に係る放射線被ばく低減方法では、原子力発電プラントの原子炉冷却系から炉心に向かって流れる冷却材に鉄を注入し、冷却材に含まれる放射性核種或いはその親核種を炉心構造物の表面でフェライト化し固着させることで原子炉冷却系周囲の放射線量を抑える放射線被ばく低減方法において、前記冷却材に注入する鉄として、溶解性の有機酸鉄であるクエン酸鉄を用いることを特徴とする。

[0014] また、本発明の他の実施例に係る放射線被ばく低減方法では、原子力発電プラントの原子炉冷却系から炉心に向かって流れる冷却材に鉄を注入し、冷却材に含まれる放射性核種或いはその親核種を炉心構造物の表面でフェライト化し固着させることで原子炉冷却系周囲の放射線量を抑える放射線被ばく低減方法において、前記冷却材に注入する鉄として、 $3\mu\text{m}$ 以下の粒径を有する有機酸鉄であるシュウ酸鉄またはフマル酸鉄を用いることを特徴とする。

[0015] 上記本発明の実施例においては、溶解性の有機酸鉄と共に不溶解性の鉄化合物を用いても良い。そして、前記不溶解性の鉄化合物として、酸化水酸化鉄を用いることが好適である。

[0016] 上述の特徴を有する本発明によれば、注入鉄によりニッケルやコバルトが

燃料被覆管表面にて良好にフェライト化し固着すると共に、冷却材鉄濃度の制御が容易となり且つ鉄の注入に用いる装置の取り扱い負荷も低減できる。

図面の簡単な説明

[0017] [図1]本実施形態の放射能被ばく低減方法が適用された沸騰水型原子力発電プラントの原子炉冷却系の構成を示す概略図。

[図2]本実施形態の放射線被ばく低減方法に関わる実証試験（溶解試験）の結果を示す図。

[図3]本実施形態の放射線被ばく低減方法に関わる実証試験（反応試験）の結果を示す図。

[図4]本実施形態の放射線被ばく低減方法に関わる実証試験（付着試験）の結果を示す図。

[図5]本実施形態の放射線被ばく低減方法に関わる実証試験（分散試験）の結果を示す図。

[図6]本実施形態の放射線被ばく低減方法に関わる実証試験（反応試験）の結果を示す図。

[0018] 上記図面（特に図1）において、各符号は、RC……原子炉冷却系、MS……主蒸気系、FD……給水系、RRS……原子炉冷却材再循環系、CUW……冷却材浄化系、RHR……残留熱除去系、P……鉄の注入点、を示す。

発明を実施するための最良の形態

[0019] 本発明に係る放射線被ばく低減方法の実施形態を、沸騰水型原子力発電プラント（以下、BWR）の原子炉冷却系に適用した例に基づき、添付図面を参照して説明する。

[0020] （第1実施形態）

図1は本実施形態の放射線被ばく低減方法が適用されたBWRを示す図である。なお、図1はBWRの炉内構造ならびに原子炉冷却系、冷却材浄化系、残留熱除去系について示したものである。

[0021] BWR1の原子炉冷却系RCでは、原子炉圧力容器101内部の炉心102で温められた冷却材（水）は、高温高压の蒸気として主蒸気系MSの主蒸気管103

に送られ、発電機の駆動源であるタービン104の動力として用いられる。なお、タービン104から排気される蒸気は復水として確保され、原子炉冷却系R Cを成す機器・配管の防食のために不純物が除去される。そして、この復水は、冷却材として原子炉圧力容器101に供給可能となるように規定温度まで過熱された後、給水系F Dの給水管105を通して再び原子炉圧力容器101に冷却材として供給される。尚、図1中符号106は給水ポンプである。

[0022] また、原子炉圧力容器101内部の冷却材は、原子炉冷却材再循環系R R Sにおいて、再循環系配管107に取り込まれて再循環ポンプ108で昇圧された後、ジェットポンプ109から原子炉圧力容器101内部に噴射供給される。この再循環ポンプ108の出力を調節することにより、冷却材供給流量制御による炉心出力制御が行われると共に原子炉圧力容器101内部において冷却材が攪拌される。

[0023] 再循環系配管107に取り込まれた冷却材の支流は、冷却材浄化系C U Wにおいて、熱交換器110（再生熱交換器110 a、非再生熱交換器110 b）で濾過・脱塩に適した温度まで冷却後、ポンプ111で昇圧され、濾過脱塩装置112にて不純物が除去される。浄化処理を経た冷却材は、再生熱交換器110 aで熱回収後、給水系F Dにおける給水管105を通して原子炉圧力容器101内部に供給される。また、再循環系配管107に取り込まれた冷却材の他の支流は、プラント停止・冷却などのプラント運転モードに応じて、残留熱除去系R H Rにおいてポンプ113により昇圧されると共に熱交換器114で所定温度まで冷却される。

[0024] 原子炉冷却系R Cを流れる高温高圧の冷却材と接触する機器・配管の材料には、高温高圧下でも優れた機械的強度および耐腐食性を有するステンレス鋼やニッケル基合金が用いられる。しかしながら、ステンレス鋼やニッケル基合金であっても腐食反応と無縁ではなく、その表面に酸化皮膜が生成して粒子状のニッケル核種を含むクラッド（金属酸化物）やイオン性不純物が冷却材に移行し得る。

[0025] 冷却材に含まれるクラッドやイオン性不純物などは総じて腐食生成物と称され、原子炉冷却系R C、冷却材浄化系C U W、残留熱除去系R H Rを経て

最終的に炉心102に持ち込まれる。炉心102に持ち込まれた腐食生成物は、炉心102、特に燃料被覆管表面、で中性子照射を受けて放射化され、放射性腐食生成物となる。例えば、腐食性生物に含まれるニッケル58やコバルト59は、高エネルギーのガンマ線を放出するコバルト58やコバルト60となる。なお、放射性腐食生成物は、放射化された炉内構造物の金属材料が剥離或いは溶出することによっても生成する。

[0026] 種々のプロセスを経て生成するコバルトの放射性同位元素を含む放射性腐食生成物は、粒子状或いはイオン状の形態で冷却材の流れに沿って原子炉冷却系RCを循環する。この放射性腐食生成物の一部は再び燃料被覆管に付着・固定化したり冷却材浄化系CUWの濾過脱塩装置112やその他の浄化装置で除去されるが、他の一部は原子炉冷却系RCを構成する機器・配管の内表面に付着し、原子炉冷却系RC周囲の放射線量を高める。かかる原子炉冷却系RC周囲の放射線量を低減するため、本実施形態の放射線被ばく低減方法が用いられる。

[0027] 本実施形態の放射線被ばく低減方法は、BWR1の原子炉冷却系RCから炉心102に向かって流れる冷却材に鉄を注入し、冷却材に含まれる放射性核種或いはその親核種を炉心102、特に燃料棒表面、でフェライト化し固着させることで原子炉冷却系RC周囲の放射線量を抑えるもので、次の工程1～4（順不同）を備える。

[0028] 工程1：クエン酸鉄の水溶液を貯留するタンクと、このタンク内のクエン酸鉄溶液を高圧の原子炉冷却系RCに注入可能な高圧注入ポンプとを用意する。

[0029] 工程2：クエン酸鉄溶液の注入点を、原子炉冷却系RCにおける再循環系配管107或いは給水管105の給水ポンプ106吐出側に設定する。図1の符号Pは鉄の注入点である。

[0030] なお、クエン酸鉄溶液中の鉄はイオン状態であるため、他の化学種との反応性が高い。このため、炉心102をターゲットとした鉄イオンの輸送ロスを低減すべく、鉄の注入点Pは原子炉圧力容器101に近いほど好ましい。また、鉄

の注入点Pは、単一でもよいし複数でもよい。

[0031] 工程3：冷却材が循環しているとき、例えば、プラントの運転中、起動操作中或いは停止操作中に、各注入点Pから鉄の注入を開始する。

[0032] 工程4：冷却材の鉄濃度が給水中の濃度で0.05ppb~0.5ppb程度になるように、鉄の注入量を調整する。その理由は、冷却材の鉄濃度が給水中の濃度で0.05ppb~0.5ppbの範囲であれば、冷却材導電率などのプラント特性に与える影響が無視できることによる。

[0033] 次に、本実施形態の放射線被ばく低減方法の効果を、実証試験の結果を用いて説明する。

[0034] 実証試験は、冷却材鉄濃度の制御性、ニッケルフェライトやコバルトフェライトの生成速度、各フェライトの燃料被覆管表面での固着性に関わるクエン酸鉄の化学特性を確認するために行ったものである。この実証試験は、[溶解試験]、[反応試験]、[付着試験]から成る。

[0035] [溶解試験]

溶解試験は、冷却材鉄濃度の制御性に関わるクエン酸鉄の化学特性を確認するものである。この溶解試験の手順(ステップ)を説明する。

[0036] ステップS101：ビーカの中で、鉄濃度が150ppmになるように500mLの純水にクエン酸鉄を添加する。

[0037] ステップS102：ビーカ内のクエン酸鉄溶液を薬さじで攪拌しながらこのクエン酸鉄溶液に超音波を投射して、溶質を均等に分散させる操作を10分間行う。この超音波処理の後、ビーカを静置する。

[0038] ステップS103：超音波処理の直後から10分経過後、20分経過後、30分経過後、45分経過後、60分経過後の各タイミングで懸濁液を採取する。

[0039] ステップS104：空隙サイズが0.1 μ mのフィルタに採取した懸濁液を滴下し、減圧濾過操作を行う。

[0040] ステップS105：蛍光X線分析装置を用いて、フィルタに捕集された鉄の量を測定する。

[0041] 図2は本実施形態の放射線被ばく低減方法に関わる実証試験（溶解試験）の結果を示す図である。図2において、横軸はステップS102における超音波処理の直後を基準（0分）とした時間である。また、縦軸は鉄の全量（懸濁成分とイオン成分の和）に対する懸濁成分の割合およびイオン成分の割合である。

[0042] クエン酸鉄の成分である鉄は、図2に示すように、時間と共にイオン化し、超音波処理の直後60分経過後に略全量がイオン化した。

[0043] この結果、

(a) 冷却材（水）に注入されたクエン酸鉄の成分鉄は速やかに（凡そ60分以内）に略全量がイオンとなり原子炉冷却系RCを循環する。或いは、クエン酸鉄溶液を貯留するタンク内で、クエン酸鉄溶液の成分鉄は速やかに略全量がイオンとなり、冷却材に注入された後、鉄イオンが原子炉冷却系RCを循環する。このため、クエン酸鉄の水に対する溶解性すなわち高い分散性により、原子炉冷却系RCの冷却材に鉄を均一流量で供給でき冷却材鉄濃度を制御し易いものとなる。

[0044] (b) 冷却材に注入する鉄としてクエン酸鉄を用いることで、鉄イオンを得ることを目的として電解操作を用いる必要が無い。したがって、電解操作を用いた場合のように電極表面に生成した酸化皮膜を除去するための機械的洗浄などは不要であり、鉄イオンの注入に用いる装置の取り扱い負荷も低減できる。

[0045] [反応試験]

反応試験は、ニッケルフェライトやコバルトフェライトの生成速度に関わるクエン酸鉄の化学特性を確認するものである。この反応試験の手順（ステップ）を説明する。

[0046] ステップS201：粒子状の鉄、クエン酸鉄、シュウ酸鉄の3種類の鉄試薬を用意し、鉄の重量が2.5mgになるように各鉄試薬を採取し、それぞれテフロン（登録商標名）製の試験管（容積20ml）に入れる。

[0047] ステップS202：各試験管に純水を15ml加え、ニッケルの重量が1

25 mg になるように硫酸ニッケル水溶液を加える。

[0048] ステップ S 2 0 3 : 各試験管に超音波を投射し、試験管内の溶質を均等に分散させる。

[0049] ステップ S 2 0 4 : 各試験管をオートクレーブに入れ、試験管を 2 8 5 °C で約 1 7 時間加熱する。なお、温度 (2 8 5 °C) は、BWR 1 の原子炉冷却系 R C における冷却材温度を模擬して設定したものである。

[0050] ステップ S 2 0 5 : 加熱終了後、各試験管内の反応物を 0 . 1 μ m のフィルタで濾過し、蛍光 X 線分析装置および X 線回折装置を用い反応物の形態と組成比を得る。

[0051] 図 3 は本実施形態の放射線被ばく低減方法に関わる実証試験 (反応試験) の結果を示す図である。

[0052] 図 3 に示すように、粒子状の鉄と硫酸ニッケルとの反応下における鉄の存在形態は、ニッケルフェライト (NiFe_2O_4) とヘマタイト (Fe_2O_3) が支配した。クエン酸鉄と硫酸ニッケルとの反応下における鉄の存在形態は、ニッケルフェライトが支配した。シュウ酸鉄と硫酸ニッケルとの反応下における鉄の存在形態は、ニッケルフェライトが支配したが、注入形態のシュウ酸鉄が少量 (約 5 %) 残った。

[0053] すなわち、クエン酸鉄は、ニッケルとの反応性が高く、粒子状の鉄やシュウ酸鉄と比較してニッケルフェライトを生成しやすい。また、クエン酸鉄は、ニッケルと化学的性質が類似するコバルトとの反応性も高く、粒子状の鉄やシュウ酸鉄と比較してコバルトフェライトを生成しやすいと考えられる。

[0054] この結果、

(c) 冷却材にクエン酸鉄を注入すると、粒子状の鉄やシュウ酸鉄を注入する場合と比較してニッケルやコバルトを良好にフェライト化できる。

[0055] [付着試験]

付着試験は、燃料被覆管表面におけるニッケルフェライトやコバルトフェライトの固着性に関わるクエン酸鉄の化学特性を確認するものである。この付着試験の手順 (ステップ) を説明する。

- [0056] ステップS301：粒子状の鉄、クエン酸鉄の2種類の鉄試薬を用意し、各鉄試薬ごとに、鉄濃度が100ppbで且つニッケルイオン濃度が10ppbの溶液を作成する。
- [0057] ステップS302：BWR1の燃料被覆管および燃料被覆管周囲の沸騰環境を模擬した試験体系に、ステップS301で作成した鉄試薬の各溶液を通水する。溶液の通水流量は、250ml/minで、各溶液の通水時間は約100時間である。なお、この試験体系は、燃料被覆管を模擬した試験片（外形約12mm、長さ約200mmのジルカロイ合金から成る管材）をシースヒータで覆い、シースヒータ内に水を充填すると共にこの充填水を過熱沸騰させることにより構成したものである。
- [0058] ステップS303：ステップS302の通水後、試験片の表面におけるニッケルの付着量を定量する。
- [0059] 図4は本実施形態の放射線被ばく低減方法に関わる実証試験（付着試験）の結果を示す図である。
- [0060] 図4に示すように、試験片の表面のニッケル付着量は、粒子状の鉄の溶液を通水した場合は490mg、クエン酸鉄の溶液を通水した場合は1600mgであった。つまり、クエン酸鉄は、粒子状の鉄と比較して、ニッケルを試験片に固着させやすい。また、クエン酸鉄は、粒子状の鉄と比較してニッケルと化学的性質が類似するコバルトも試験片に固着させやすいと考えられる。
- [0061] この結果、
- (d) 冷却材にクエン酸鉄を注入すると、粒子状の鉄を注入する場合と比較し、ニッケルやコバルトが燃料被覆管の表面で固着しやすいものとなる。なお、固着の程度は、粒子状の鉄の3倍以上である。
- [0062] 以上の記載より明らかなように、本第1実施形態の放射線被ばく低減方法にあつては、
- (1) プラントの運転中等において冷却材が循環しているときに、その冷却材に注入する鉄として、クエン酸鉄を用いる。このため、注入鉄によりニッ

ケルやコバルトが燃料被覆管表面にて良好にフェライト化し固着すると共に、冷却材鉄濃度の制御が容易となり且つ鉄の注入に用いる装置の取り扱い負荷も低減できる。

[0063] (2) また、冷却材に対するクエン酸鉄の注入点を、原子炉冷却系 R C における再循環系配管 107 或いは給水管 105 の給水ポンプ 106 吐出側に設定する。すなわち、クエン酸鉄の注入点を、原子炉冷却系 R C のうち原子炉圧力容器 101 に極力近い位置に設定する。このため、反応性の高いクエン酸鉄が炉心 102 に到達する前に原子炉冷却系 R C の機器・配管に付着し減少する量を見越した過剰な鉄注入を抑制でき、プラント運転への影響を低減できる。

[0064] (第 2 実施形態)

本実施形態は、第 1 実施形態の放射線被ばく低減方法における工程 1 ～ 工程 4 で用いる鉄試薬を変更した実施例である。

[0065] この第 2 実施形態の放射線被ばく低減方法では、BWR 1 の原子炉冷却系 R C に注する鉄として、粒径が $1 \sim 3 \mu\text{m}$ の粒径を有するシュウ酸鉄を純水に混ぜて作成した懸濁液を用いる。なお、シュウ酸鉄は、クエン酸鉄と比較して冷却材に対し難溶解性である。なお、他の構成は第 1 実施形態と同様であるので、説明を省略する。

[0066] 次に、本実施形態の放射線被ばく低減方法の効果を、実証試験（分散試験）の結果を用いて説明する。

[0067] [分散試験]

分散試験は、水（冷却材）に対して難溶解性を示すシュウ酸鉄について、冷却材鉄濃度の制御性に関わる化学特性を確認するものである。この分散試験の手順（ステップ）を説明する。

ステップ S 4 0 1：市販のシュウ酸鉄、小粒径シュウ酸鉄の 2 種類の鉄試薬を用意し、ビーカ内で各鉄試薬の懸濁液を作成する。ここで、市販のシュウ酸鉄の粒径は、大部分が数十 μm であり、小粒径シュウ酸鉄の粒径は、大部分が $1 \sim 3 \mu\text{m}$ である。

[0068] ステップ S 4 0 2：各ビーカ内の懸濁液を薬さじで攪拌しながらこの懸濁

液に超音波を投射して、懸濁成分を均等に分散させる操作を行う。この超音波処理の後、ビーカを静置する。

[0069] ステップS 4 0 3：超音波処理の直後から10分経過後、20分経過後、30分経過後、45分経過後、60分経過後のタイミングで各ビーカ内のシュウ酸鉄の液中残存率を調べる。

[0070] 図5は本実施形態の放射線被ばく低減方法に関わる実証試験（分散試験）の結果を示す図である。

[0071] 図5において、横軸はステップS 4 0 3における超音波処理の直後を基準（0分）とした時間である。また、縦軸はビーカ内のシュウ酸鉄の液中残存率である。この液中残存率は、ビーカに投入したシュウ酸鉄の全量に対するシュウ酸の懸濁分量（沈降分量を除いたもの）である。なお、図5の「小粒径シュウ酸鉄1」および「小粒径シュウ酸鉄2」は、粒径その他の試験条件は同一である。

[0072] 図5に示すように、市販のシュウ酸鉄（粒径数十 μm ）は、超音波処理の終了から60分経過後に殆ど沈降してしまい、シュウ酸鉄の液中残存率は約5%であった。これに対し、小粒径のシュウ酸鉄（粒径1～3 μm ）は、超音波処理の終了から60分経過後も殆ど沈降せず、シュウ酸鉄の液中残存率は約80%以上であった。つまり、粒径が1～3 μm のシュウ酸鉄は、粒径が数十 μm のシュウ酸鉄と比較すると、分散性が著しく高い。

[0073] この結果、

(e) 冷却材に注入するシュウ酸鉄（冷却材に対して難溶解性）として粒径1～3 μm のものをを用いると、シュウ酸鉄は、高い分散性によって冷却材中で懸濁すると共にこの懸濁状態が長期維持されながら原子炉冷却系RCを循環する。このため、原子炉冷却系RCの冷却材に鉄を均一流量で供給でき冷却材鉄濃度を制御し易いものとなる。なお、鉄化合物の粒径を小さくする方法としては、シュウ酸鉄の作成時に原料濃度を高くし粒子成長を抑える方法、物理的に破碎する方法などがある。

[0074] (f) 冷却材に注入する鉄としてシュウ酸鉄を用いることで、電解操作を用

いた場合のように電極表面に生成した酸化皮膜を除去するための機械的洗浄などは不要である。さらに、シュウ酸鉄の高い分散性により、これを貯留するタンクの攪拌作業の負担が低減される。このため、鉄試薬の注入に用いる装置の取り扱い負荷も低減できる。

[0075] (g) 冷却材にシュウ酸鉄を注入すると、粒子状の鉄を注入する場合と同様にニッケルを良好にフェライト化できる（図3参照）。また、ニッケルと化学的性質が類似するコバルトについても同様に、良好にフェライト化できると考えられる。

[0076] (h) シュウ酸鉄は、クエン酸鉄と比較すると水に対する溶解性は低くその殆どが粒子状の懸濁成分となる。このため、冷却材にシュウ酸鉄を注入すると、クエン酸鉄を注入する場合と比較して炉心102をターゲットとした輸送口スを低減できる。

[0077] 以上の記載より明らかなように、本第2実施形態の放射線被ばく低減方法にあっては、

(3) プラントの運転中等において冷却材が循環しているときに、その冷却材に注入する鉄として、 $1 \sim 3 \mu\text{m}$ 以下の粒径を有するシュウ酸鉄を用いる。このため、注入鉄によりニッケルやコバルトが燃料被覆管表面にて良好にフェライト化し固着すると共に、冷却材鉄濃度の制御が容易となり且つ鉄の注入に用いる装置の取り扱い負荷も低減できる。

[0078] (第3実施形態)

本実施形態は、第1実施形態の放射線被ばく低減方法における工程1～工程4で用いる鉄試薬を変更した実施例である。

[0079] 本実施形態の放射線被ばく低減方法では、BWR1の原子炉冷却系RCに注する鉄として、クエン酸鉄と酸化水酸化鉄（ $\text{FeO}(\text{OH})$ ）の混合鉄試薬を純水に混ぜて作成した懸濁液を用いる。なお、他の構成は第1実施形態と同様であるので、説明を省略する。

[0080] 次に、本実施形態の放射線被ばく低減方法の効果を、実証試験（反応試験）の結果を用いて説明する。

[0081] [反応試験]

反応試験は、ニッケルフェライトやコバルトフェライトの生成速度に関わる混合鉄試薬の化学特性を確認するものである。なお、混合鉄試薬の成分であるクエン酸鉄の反応試験は、第1実施形態で説明した反応試験（ステップS201～ステップS205）と同様である。

[0082] 混合鉄試薬の成分である酸化水酸化鉄の反応試験は、酸化水酸化鉄を純水に混ぜた懸濁液にニッケルを入れ、反応物を分析することにより行った。

[0083] 図6は本実施形態の放射線被ばく低減方法に関わる実証試験（反応試験）の結果を示す図である。図6において、「反応前」の結果は、懸濁液とニッケルとの反応前における反応物の存在比率である。「反応後1」および「反応後2」は、同一条件下の2回の実験に関わる結果であり、それぞれ一回目と二回目の分析時における反応物の存在比率である。なお、一回目の分析は、酸化水酸化鉄とニッケルとの反応開始から17時間後、二回目も同様に同反応開始から17時間後に行ったものである。

[0084] 図6に示すように、一回目の成分分析の時点では、酸化水酸化鉄とニッケルとの反応により原料である酸化水酸化鉄が37%残留したほか、ニッケルフェライトが30%生成し、ヘマタイトが34%生成した。二回目の成分分析の時点では、酸化水酸化鉄とニッケルとの反応により、原料である酸化水酸化鉄が14%残留したほか、ニッケルフェライトが52%生成し、ヘマタイトが34%生成した。

[0085] 残留している酸化水酸化鉄もニッケルとの反応により、次第にヘマタイト或いはニッケルフェライトを生成する。また、生成したヘマタイトは、ニッケルと反応して穏やかにニッケルフェライトとなる。つまり、酸化水酸化鉄は、クエン酸鉄と比較するとニッケルをフェライト化する反応性は低いが、フェライト化の薬剤としての寿命は長い。なお、酸化水酸化鉄は、ニッケルと化学的性質が類似するコバルトとも同様の反応過程を経て、コバルトフェライトを生成すると共にフェライト化の薬剤として寿命が長いと考えられる。

[0086] ここで、クエン酸鉄とニッケルとの反応性は良好であり（図3参照）、クエン酸鉄とコバルトとの反応性も同様であると考えられる。このため、冷却材にクエン酸鉄を注入すると、ニッケル（コバルト）を良好にフェライト化させることができる。しかしながら、クエン酸鉄とニッケル（コバルト）との反応性が高いことにより、冷却材中の鉄濃度は急速に低下し、ニッケル（コバルト）をフェライト化させる機能の持続性が良くないという一面もある。

[0087] 一方、酸化水酸化鉄は、水に対して不溶解性であることとも相まってクエン酸鉄のようにニッケルに対する反応性が高くない。このため、ニッケル存在下において、クエン酸鉄が60分ほどで略全量がニッケルフェライト生成に消費されるのに対し（図3参照）、酸化水酸化鉄にあつては、17時間経過しても数十%が残存する（図6参照）。

[0088] この結果、

(i) 冷却材にクエン酸鉄と酸化水酸化鉄の混合鉄試薬を注入すると、クエン酸鉄によりニッケルやコバルトを良好にフェライト化させつつ、酸化水酸化鉄によりフェライト化の機能を長期に至って持続させることが可能になる。

[0089] 以上の記載より明らかなように、本第3実施形態の放射線被ばく低減方法にあつては、

(4) 冷却材に注入する鉄として、クエン酸鉄と共に酸化水酸化鉄を用いる。このため、注入鉄によりニッケルやコバルトが燃料被覆管表面にて良好にフェライト化し固着すると共に、冷却材鉄濃度の制御が容易となり且つ鉄の注入に用いる装置の取り扱い負荷も低減できる。しかも、このニッケルやコバルトのフェライト化の機能を長期に至って持続させることができる。

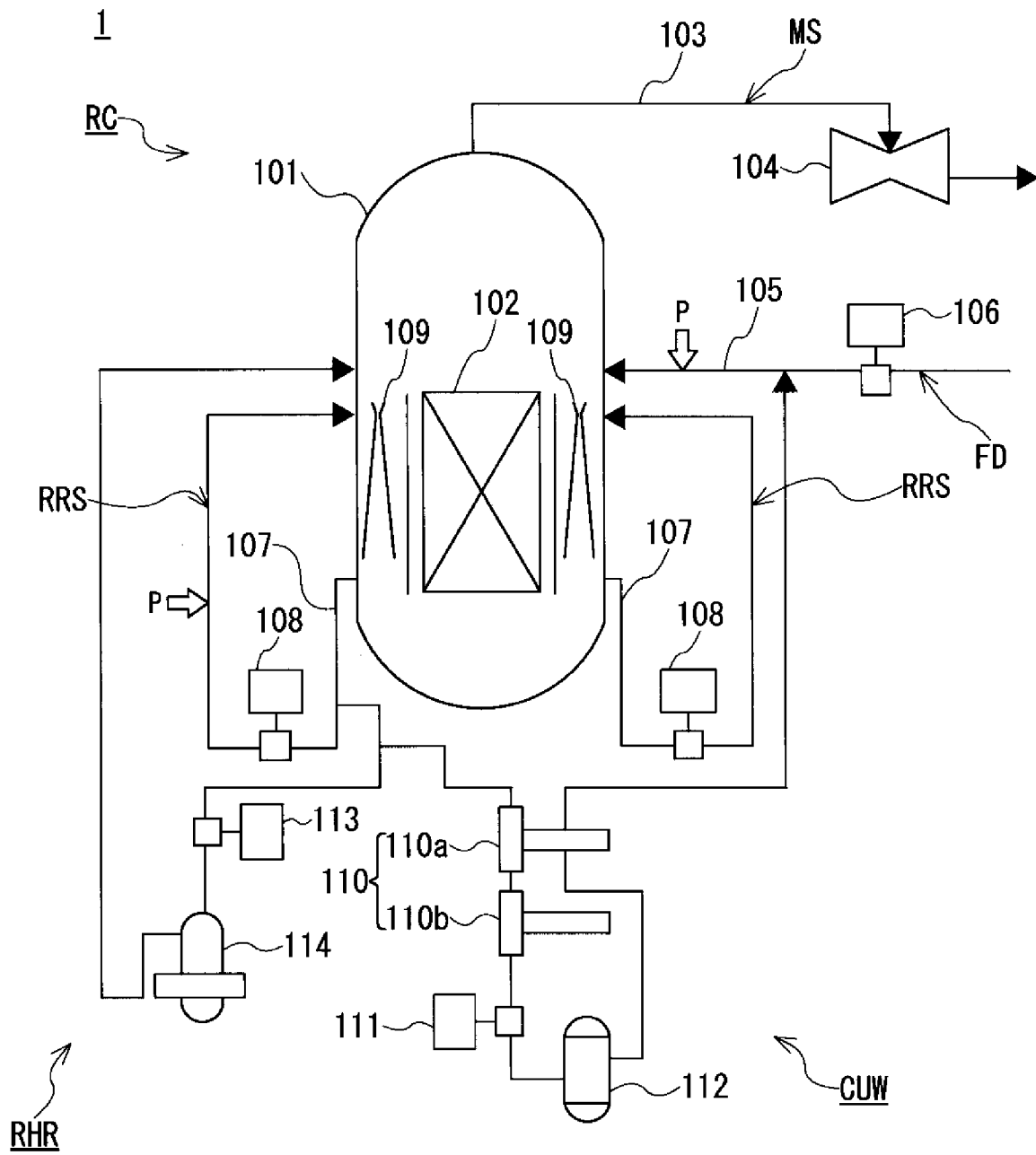
[0090] 以上、本発明に係る放射線被ばく低減方法を第1実施形態～第3実施形態に基づき説明してきたが、具体的な構成については、これらの実施形態に限られるものではなく、特許請求の範囲に記載の発明の要旨を逸脱しない限り設計の変更や追加等は許容される。

- [0091] 例えば、第1実施形態では、冷却材に注入する鉄としてクエン酸鉄を用いる例を示したが、冷却材に注入する鉄は水（冷却材）に対して溶解性の有機酸鉄であれば良い。
- [0092] 第2実施形態では、冷却材に注入するシュウ酸鉄として粒径1～3 μm のものをを用いる例を示したが、シュウ酸鉄の粒径は小さいほど好ましい（例えば1 μm 以下）。というのは、シュウ酸鉄の粒径が小さいほどシュウ酸鉄の液中における分散性が高められ、もって冷却材鉄濃度の制御性向上およびシュウ酸鉄を貯留するタンク攪拌作業の負荷軽減が図られるからである。なお、シュウ酸鉄に代えて、フマル酸鉄その他の有機酸鉄を用いても良い。
- [0093] 第3実施形態では、冷却材に注入する鉄としてクエン酸鉄と酸化水酸化鉄の混合物を用いる例を示したが、酸化水酸化鉄と共に用いる鉄は、シュウ酸鉄やフマル酸鉄その他の有機酸鉄であっても良い。さらに、酸化水酸化鉄に代えて、他の鉄化合物であっても良い。ただし、ニッケル等をフェライト化させる機能の持続性を担う観点から、この鉄化合物は、酸化水酸化鉄のように水（冷却材）における分散性が高いものほど、また、水（冷却材）に対する不溶解性の傾向が高いものほど好ましい。
- [0094] また、インターナルポンプを有する沸騰水型原子力発電プラントにあっては、鉄の注入点を原子炉冷却材再循環系に設定する代わりに、この鉄の注入点を冷却材浄化系等に設定するようにしても良い。

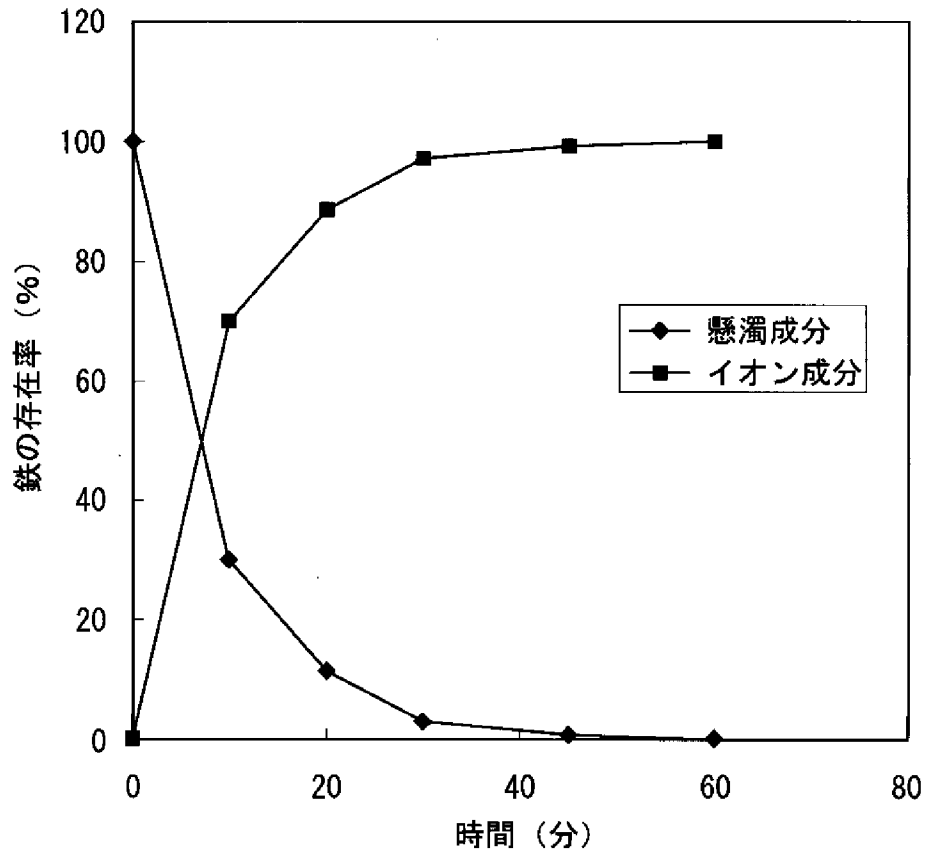
請求の範囲

- [請求項1] 原子力発電プラントの原子炉冷却系から炉心に向かって流れる冷却材に鉄を注入し、冷却材に含まれる放射性核種或いはその親核種を炉心構造物の表面でフェライト化し固着させることで原子炉冷却系周囲の放射線量を抑える放射線被ばく低減方法において、
- 前記冷却材に注入する鉄として、溶解性の有機酸鉄であるクエン酸鉄を用いることを特徴とする放射線被ばく低減方法。
- [請求項2] 前記溶解性の有機酸鉄と共に不溶解性の鉄化合物を用いることを特徴とする請求項1に記載の放射線被ばく低減方法。
- [請求項3] 前記不溶解性の鉄化合物として、酸化水酸化鉄を用いることを特徴とする請求項2に記載の放射線被ばく低減方法。
- [請求項4] 前記溶解性の有機酸鉄の注入点を、原子炉冷却系における原子炉冷却材再循環系或いは給水系の給水ポンプ吐出側に設定することを特徴とする請求項1に記載の放射線被ばく低減方法。
- [請求項5] 原子力発電プラントの原子炉冷却系から炉心に向かって流れる冷却材に鉄を注入し、冷却材に含まれる放射性核種或いはその親核種を炉心構造物の表面でフェライト化し固着させることで原子炉冷却系周囲の放射線量を抑える放射線被ばく低減方法において、
- 前記冷却材に注入する鉄として、 $3\mu\text{m}$ 以下の粒径を有するシュウ酸鉄またはフマル酸鉄を用いることを特徴とする放射線被ばく低減方法。
- [請求項6] 前記有機酸鉄と共に不溶解性の鉄化合物を用いることを特徴とする請求項5に記載の放射線被ばく低減方法。
- [請求項7] 前記不溶解性の鉄化合物として、酸化水酸化鉄を用いることを特徴とする請求項6に記載の放射線被ばく低減方法。

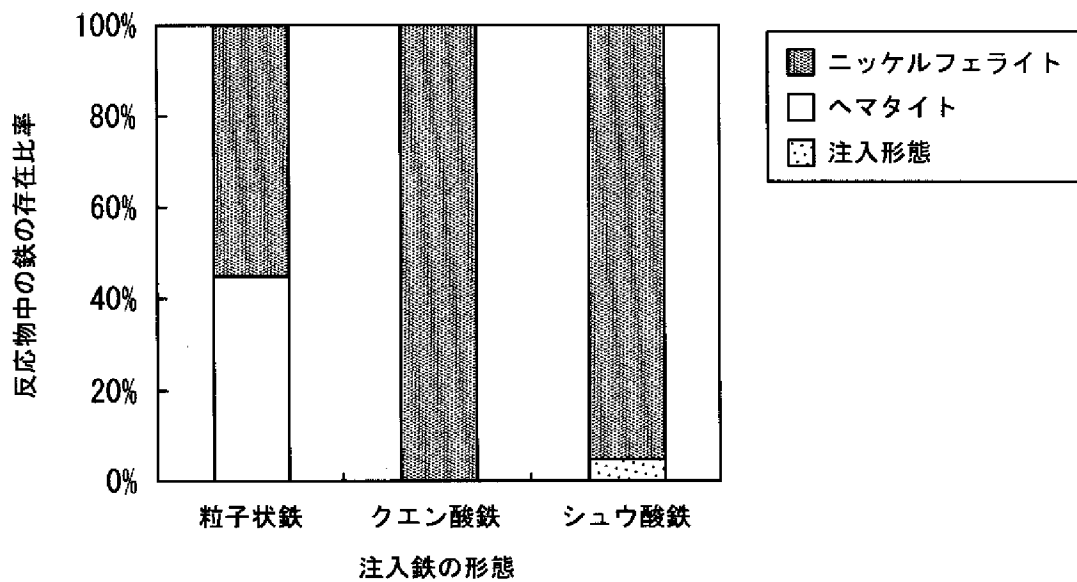
[図1]



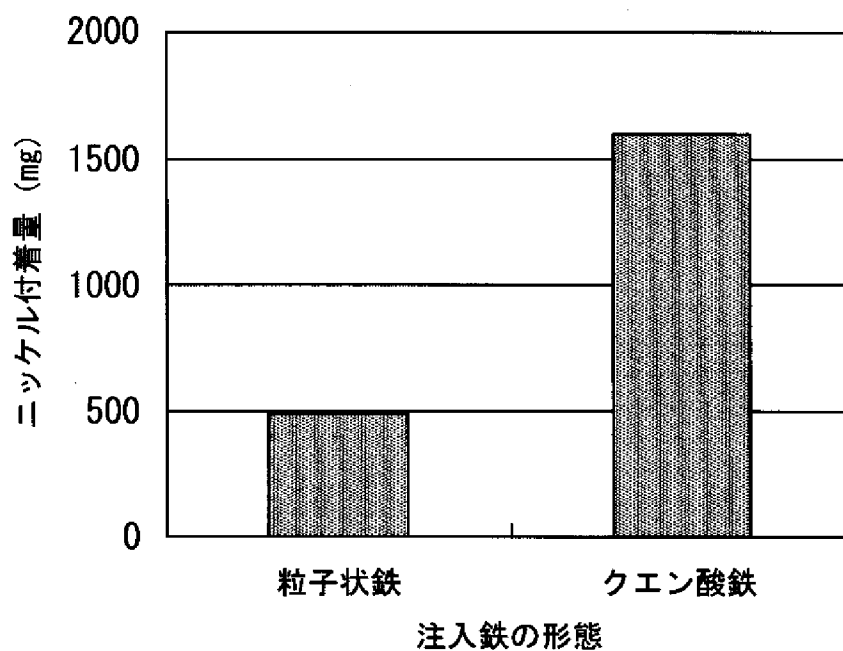
[図2]



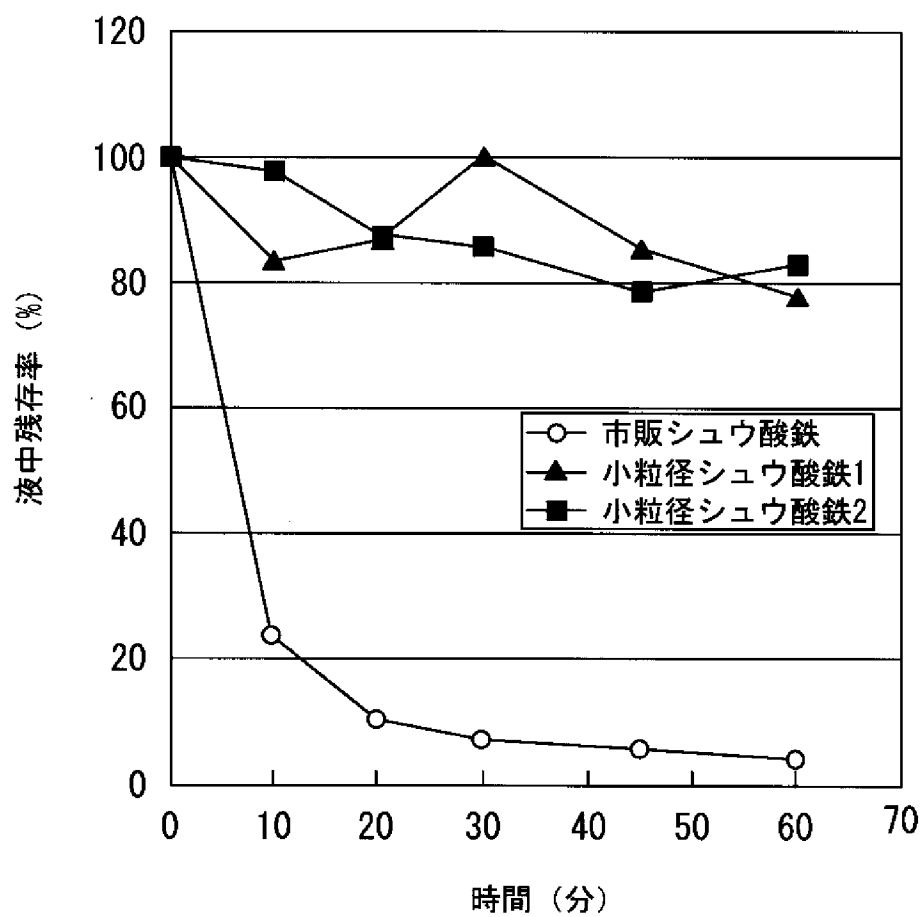
[図3]



[図4]



[図5]



[図6]

	鉄の存在比率（％）		
	酸化水酸化鉄	ニッケルフェライト	ヘマタイト
反応前	100	0	0
反応後1	37	30	34
反応後2	14	52	34

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/068792

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

G21D3/08(2006.01)i, G21C19/307(2006.01)i, G21D1/00(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

G21D3/08, G21C19/307, G21D1/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2010
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2010	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2010

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

JSTPlus (JDreamII)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y A	JP 2007-192672 A (Hitachi, Ltd.), 02 August 2007 (02.08.2007), entire text; all drawings (Family: none)	1, 4-5 4 2-3, 6-7
X Y A	JP 05-215893 A (General Electric Co.), 27 August 1993 (27.08.1993), entire text; all drawings & US 5245642 A & EP 540201 A1	1, 5 4 2-3, 6-7
A	JP 2007-182604 A (Hitachi, Ltd.), 19 July 2007 (19.07.2007), entire text; all drawings (Family: none)	1-7

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
28 January, 2010 (28.01.10)Date of mailing of the international search report
09 February, 2010 (09.02.10)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/068792

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2002-131473 A (Hitachi, Ltd.), 09 May 2002 (09.05.2002), entire text; all drawings (Family: none)	1-7
E, A	JP 2009-264973 A (Toshiba Corp.), 12 November 2009 (12.11.2009), entire text; all drawings (Family: none)	1-7

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/068792

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

The invention in claim 1 does not have a special technical feature in the light of the contents disclosed in JP 5-215893.

Therefore, the invention in claim 1 and the inventions in claims 2 - 7 do not satisfy the requirement of unity of invention.

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.
- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- ☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. G21D3/08(2006.01)i, G21C19/307(2006.01)i, G21D1/00(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. G21D3/08, G21C19/307, G21D1/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 0 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 0 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 0 年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

JSTPlus(JDreamII)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X Y A	JP 2007-192672 A（株式会社日立製作所）2007.08.02, 全文、全図 (ファミリーなし)	1, 4-5 4 2-3, 6-7
X Y A	JP 05-215893 A（ゼネラル・エレクトリック・カンパニイ） 1993.08.27, 全文、全図 & US 5245642 A & EP 540201 A1	1, 5 4 2-3, 6-7

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

2 8 . 0 1 . 2 0 1 0

国際調査報告の発送日

0 9 . 0 2 . 2 0 1 0

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

青木 洋平

2 I

3 1 0 4

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 2 7 3

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2007-182604 A (株式会社日立製作所) 2007. 07. 19, 全文、全図 (ファミリーなし)	1-7
A	JP 2002-131473 A (株式会社日立製作所) 2002. 05. 09, 全文、全図 (ファミリーなし)	1-7
E, A	JP 2009-264973 A (株式会社東芝) 2009. 11. 12, 全文、全図 (ファ ミリーなし)	1-7

第Ⅱ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（PCT17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求項 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。
つまり、
2. ☐ 請求項 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求項 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第Ⅲ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるところの国際調査機関は認めた。

請求項1に係る発明は、特開平5-215893号公報に開示された内容に照らして、特別な技術的特徴を有さない。

よって、請求項1に係る発明と請求項2-7に係る発明とは、発明の単一性の要件を満たさない。

1. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求項について作成した。
2. ☒ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求項について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求項のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求項について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料及び、該当する場合には、異議申立手数料の納付と共に、出願人から異議申立てがあった。
- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあったが、異議申立手数料が納付命令書に示した期間内に支払われなかった。
- ☐ 追加調査手数料の納付はあったが、異議申立てはなかった。