

文章编号:0253-9950(2009)02-0114-07

高放废物玻璃固化过程中玻璃组成 对硫酸盐溶解度的影响

刘丽君¹, 李金英², 郗东生¹

1. 中国原子能科学研究院, 北京 102413; 2. 中国核工业集团公司, 北京 100822

摘要:为了解决含有较高硫酸根浓度的高放废液在熔制过程中产生分离的黄色第二相(简称黄相)的问题, 首先需要了解硫在硼硅酸盐玻璃中的行为, 尤其是硫酸盐溶解度与玻璃组成的关系。通过实验建立了多组分玻璃体系中硫酸盐溶解度与玻璃组成参数间的模型公式, 得出了硫酸盐溶解度与玻璃中的非桥氧浓度成线性关系, 与 $x^2(O^-)/x(O^0)$ (O^0 , 桥氧) 成对数关系。

关键词: 硼硅酸盐玻璃; 硫酸盐溶解度; 玻璃组成

中图分类号: O613.7 **文献标志码:** A

Dependence of Sulfate Solubility on Waste Glass Composition During the Vitrification of High Level Wastes

LIU Li-jun¹, LI Jin-ying², QIE Dong-sheng¹

1. China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China;
2. China National Nuclear Corporation, Beijing 100822, China

Abstract: Borosilicate matrices are widely accepted as containment of high level wastes on account of its good chemical durability and endurable formation temperatures. However, the yellow second phase (yellow phase) will be produced during melting if the high level liquid wastes contain high concentration sulfate, which harms the performances of vitrification form. To resolve the yellow phase problems, it is necessary to understand sulphur behaviors in the borosilicate waste glasses, especially the relation between sulfate solubility and glass composition. A large amount of experiments have been done to explore the relation. The experiment results show that the relation between the glass composition parameter $x(O^-)$ and sulfate solubility is linear and the relation between the glass composition parameter $x^2(O^-)/x(O^0)$ and sulfate solubility is logarithmic.

Key words: borosilicate glass; sulfate solubility; glass composition

硼硅酸盐玻璃固化高放废物是目前国际公认的较好方法。采用这种方法所产生的固化体具有

良好的化学耐久性, 熔制温度在可接受范围。然而含有较高硫酸根浓度的高放废液在熔制过程中

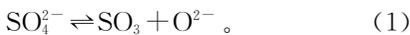
会产生分离的黄色第二相(简称黄相)。这是一种易溶于水的结晶物质,分析表明,玻璃固化体“黄相”含有碱金属和碱土金属的硫酸盐、铬酸盐和钼酸盐,并有一定的铯、锶等裂片元素。玻璃固化体在深地质处置后,一旦受到地下水浸蚀,这些核素就容易浸泡出来,进入生物圈,它严重危害玻璃固化体包容和隔离核素的作用,所以必须克服和避免这种情况发生^[1-2]。产生黄相的主要原因是硫在硼硅酸盐熔体中的溶解性较差,当高放废液中硫含量较高时,废液中的硫不能被完全包容进玻璃中。为保证高放废物玻璃满足处置的要求,需降低总废物包容量,所以硫是含有较高硫酸根浓度的高放废液玻璃固化废物包容量的限制因素,并且直接影响高放废液玻璃固化的总经济。

玻璃中的硫酸盐溶解度是指在熔池内不形成熔盐层(黄相)的前提下,玻璃能包容硫酸盐的量。我国后处理厂中使用的还原剂是氨基磺酸亚铁,因此在高放废液中含有大量的硫。我国的玻璃固化在台架实验的冷试中出现了黄相,而将来热工厂运行时要求不出现黄相。所以针对黄相问题,本实验室开展了研究,其中重要的一部分就是研究玻璃中的硫酸盐溶解度与玻璃组成的关系。

1 国外对玻璃中硫酸盐溶解度的研究

1.1 玻璃中硫酸盐溶解度的模型

Papadopoulos^[3] 1973 年曾建立了一个用于碳酸盐-石灰-二氧化硅(soda-lime-silica)的硫酸盐溶解度模型。在此模型中,桥氧(与 2 个硅原子键合的氧, O^0)、非桥氧(与 1 个硅原子键合的氧, O^-)、自由氧(O^{2-})通过如下 2 个方程达到平衡:



方程的平衡常数分别为 K_A 和 K_B 。综合 2 个方程得出硫酸盐溶解度与玻璃中桥氧和非桥氧浓度间的关系式:

$$s(SO_4^{2-}) \propto \frac{p(SO_3)c(O^-)^2}{K_A K_B c(O^0)}。$$

式中, $p(SO_3)$, 熔炉环境中 SO_3 的分压; $s(SO_4^{2-})$, 玻璃中硫酸盐的溶解度。当熔制温度和熔体上部的 $p(SO_3)$ 恒定时, Papadopoulos 定义了化学组成参数(用 $c^2(O^-)/c(O^0)$ 表示)与保留在各种玻璃中的 $s(SO_4^{2-})$ 的关系。1998 年 Ooura^[4] 对一系列碱金属硅酸盐和碱土金属-石灰-二氧化硅玻璃(包括 Ba, Sr, Pb, Ca, Mg 和

Zn 系列)证实了硫酸盐溶解度与 $c^2(O^-)/c(O^0)$ 的依赖关系。 $c(O^0)$ 由 $2x(SiO_2)$ 减去碱金属氧化物摩尔分数计算, 而 $c(O^-)$ 由玻璃的 $2x(R_2O)$ (R 为碱金属)计算。Ooura 定义了 $c^2(O^-)/c(O^0)$ 玻璃组成和硫酸盐溶解度的线性关系。硫酸盐溶解度随熔体碱金属浓度增加而增加。

另一个硫酸盐溶解度经验模型是“rule of five”模型, 用于 Hanford LAW 废物玻璃^[5]。经验公式如下:

$$w_{\max}(SO_3) = \frac{5}{w(Na_2O)}。$$

式中, $w_{\max}(SO_3)$, 玻璃中溶解的 SO_3 的最大质量分数, %; $w(Na_2O)$, 玻璃组成中 Na_2O 的质量分数, %。此经验公式表明, 硫酸盐溶解度随熔体碱金属浓度增加而降低, 与以前研究的趋势截然相反^[3-4, 6]。

1.2 玻璃组成中非桥氧浓度的计算方法

玻璃中化学组成参数一般用玻璃中所含桥氧和非桥氧的浓度表示^[3]。桥氧和非桥氧的浓度分别由体系中桥氧量或非桥氧量与氧总量的摩尔比来计算。

对于简单玻璃组成的体系, 根据每摩尔碱金属氧化物增加 2 个非桥氧的理论, 非桥氧浓度可以计算为玻璃的 $2x(R_2O)$ 。但是对于复杂体系, 非桥氧浓度不只与碱金属氧化物有关, 还与其他氧化物如 Al_2O_3 , Fe_2O_3 、碱土金属氧化物等有关。DWPF 粘度模型中曾定义了一个多种玻璃组分体系中非桥氧浓度的计算方法^[7]:

$$c(O^-) = 2[\sum_i c_i(M'_2O) + \sum_j c_j(MO) + c(Fe_2O_3) - c(Al_2O_3)] + c(B_2O_3) \quad (3)$$

式中, M' , 碱金属原子; M , 碱土金属原子。式(3)中浓度均用摩尔分数代替计算。

在 DWPF 粘度模型中, 假定纯 SiO_2 玻璃完全聚合, 每摩尔碱金属氧化物增加 2 个非桥氧, 每摩尔 Al_2O_3 通过形成 $[AlO_2]$ 结构的四面体氧化铝基团来形成 2 个桥氧键。如果 Al_2O_3 和/或 SiO_2 不足, Fe_2O_3 可以起到四面体配位的作用, 通过形成 $[FeO_2]$ 结构基团来聚合玻璃。然而, 如果玻璃中有足够的 Al_2O_3 和 SiO_2 , Fe_2O_3 是八面体, 形成 2 个非桥氧, 对玻璃基体起解聚作用。这种假设与 Mysen^[8] 的工作一致。Mysen 验证了在 $w(Fe_2O_3) = 10\%$ 的高铁岩浆中(硅酸铁玻璃) Fe_2O_3 降低了熔体粘度, $NaFeO_2$ 结构基团没有和 $NaAlO_2$ 结构基团一样结合进玻璃网络, 最后

假定每摩尔 B_2O_3 形成 1 个非桥氧。这样假定的理论建立在 Smets^[9] 的数据基础上, 并且 Konijnendijk^[10] 证实了对于含有较低 B_2O_3 浓度的硅酸钠玻璃, B_2O_3 作为 BO_4^- 四面体进入玻璃网络, 没有形成非桥氧, 而在更高浓度下, 这些四面体转变为平面的 BO_3^- 基团, 形成一个非桥氧。

真实高放废物中成分比较复杂, 包括 20 多种组分, 许多单个氧化物对玻璃中硫酸盐的溶解度有影响, 但到目前还没有测定硫酸盐溶解度与总组成间依赖关系的方法。因此本工作拟通过实验研究确定硫酸盐溶解度与总组成间的依赖关系。

2 实验部分

2.1 主要试剂及设备

实验所用化学试剂均为国产分析纯。

AT261 DeltaRange 电子天平, 瑞士 Mettler 公司, 感量为 0.000 1 g; 电炉和退火炉, 高温硅碳棒电炉, 升温速率及恒温由可控硅温度控制器控制, 上海实验电炉厂; CS600 碳硫分析仪, 美国 LECO 公司。

2.2 实验方法

所有组成影响研究均采用模拟高放废物进行。表 1 给出了此模拟废物的详细组成。实验中硫酸根通过 Na_2SO_4 引入, 废物包容量为 16% (质量分数)。表 2 和表 3 列出了实验玻璃配方的主要组成 (以质量分数表示), 配方号分别用 1-1, 2, ..., 20, 2-1, ..., 11 表示。表 2 第一组玻璃组成变化较大, 可以很好地体现出组分变化对硫酸盐溶解度的影响。表 3 中配方改变是在 1990 年研制的 90Nd/10 配方基础上, 只改变了网络调节剂的含量, 增加了几种原有配方中没有的组分, 考察

组分变化对硫酸盐溶解度的影响。

将称好的化学试剂在研钵中研细并混合均匀后装入化学瓷坩埚内, 在硅碳棒电炉内熔制。控制升温速率防止溢料, 加热到 1 150 °C, 化学瓷坩埚内的物料形成熔融玻璃液, 澄清 3 h 后将熔制好的玻璃液浇铸在预先加热的模具上成型, 然后将玻璃迅速放入 500 °C 的退火炉中退火 1 h, 最后在退火炉内自然冷却至室温。将冷却后的玻璃粉碎, 用碳硫分析仪分析硫含量。

3 结果和讨论

3.1 玻璃中包容的硫含量

所有配方在 1 150 °C 下都能很好的熔制成玻璃, 在试验条件下最终熔制产品的表面都未观察到黄相产生。32 种玻璃中包容的硫含量列入表 4, 以 $w(SO_3)$ 表示。由表 4 可知, 第一组配方的玻璃随着组成的较大变化, 玻璃中 $w(SO_3)$ 也变化很大, 从 0.385% ~ 0.749% 不等; 第二组配方的玻璃只改变了网络调节剂浓度, 玻璃中 $w(SO_3)$ 变化不大, 都在 $(0.325 \pm 0.100)\%$ 范围内。

3.2 硫酸盐溶解度与非桥氧浓度的关系

用公式(3)计算出体系中的非桥氧浓度 (以非桥氧的摩尔分数 $x(O^-)$ 计) 并对玻璃中溶解的 $w(SO_3)$ 作图示于图 1。根据已知硫加入量和实际分析测得的量可知, 所加入的硫都溶解进玻璃, 在此玻璃中硫酸盐并未达到最大溶解程度, 所以作图时舍弃了实验中前几组数据点。由图 1 可知, 玻璃中硫酸盐的溶解度与体系中的 $x(O^-)$ 成正比, 直线方程为 $y = -0.09 + 1.48x$, $r^2 = 0.89$ 。

表 1 模拟高放废液组成

Table 1 Compositions of simulated HLW

| 组分 (Compositions) | $\rho / (g \cdot L^{-1})$ | $w / \%$ | 组分 (Compositions) | $\rho / (g \cdot L^{-1})$ | $w / \%$ |
|-------------------|---------------------------|----------|-------------------|---------------------------|----------|
| SO_3 | 4.24 | 4.16 | NiO | 3.78 | 3.71 |
| P_2O_5 | 0.46 | 0.45 | TiO_2 | 0.45 | 0.44 |
| Al_2O_3 | 9.26 | 9.09 | Nd_2O_3 | 13.12 | 12.88 |
| Fe_2O_3 | 20.69 | 20.30 | BaO | 0.13 | 0.13 |
| K_2O | 0.60 | 0.59 | SrO | 0.24 | 0.23 |
| Na_2O | 44.95 | 44.11 | MoO_3 | 1.02 | 1.00 |
| Cr_2O_3 | 1.90 | 1.86 | ZrO_2 | 0.99 | 0.97 |

表 2 第一组玻璃的成分
Table 2 Compositions of the first group of glass formulas

| 配方 (Formulas) | w/% | | | | | | |
|------------------|------------------|-------------------------------|--------------------------------------|--------------------------------|------|------------------|-----|
| | SiO ₂ | B ₂ O ₃ | Na ₂ O+ Li ₂ O | Al ₂ O ₃ | CaO | TiO ₂ | MgO |
| 1-1 | 40.0 | 15.0 | 7.3 | 10.0 | 15.0 | 4.7 | 8.0 |
| 1-2 | 40.0 | 15.0 | 7.3 | 10.0 | 20.0 | 3.7 | 4.0 |
| 1-3 | 40.0 | 15.0 | 7.3 | 10.0 | 24.0 | 3.7 | |
| 1-4 | 40.0 | 20.0 | 7.3 | 10.0 | 15.0 | 3.7 | 4.0 |
| 1-5 | 40.0 | 20.0 | 7.3 | 10.0 | 20.0 | 2.7 | |
| 1-6 | 40.0 | 20.0 | 7.3 | 5.0 | 20.0 | 2.7 | 5.0 |
| 1-7 | 40.0 | 20.0 | 7.3 | 10.0 | 20.0 | 1.0 | 2.0 |
| 1-8 | 40.0 | 25.0 | 7.3 | 3.5 | 20.0 | 1.0 | 3.2 |
| 1-9 | 40.0 | 25.0 | 7.3 | 5.0 | 20.0 | 1.0 | 1.7 |
| 1-10 | 40.0 | 25.0 | 7.3 | 10.0 | 15.0 | 1.0 | 1.7 |
| 1-11 | 50.0 | 15.0 | 7.3 | 3.5 | 15.0 | 2.0 | 7.2 |
| 1-12 | 50.0 | 15.0 | 7.3 | 3.5 | 20.0 | 2.0 | 2.2 |
| 1-13 | 50.0 | 15.0 | 7.3 | 10.0 | 15.0 | 2.7 | |
| 1-14 | 50.0 | 15.0 | 7.3 | 7.0 | 15.0 | 1.5 | 4.2 |
| 1-15 | 50.0 | 20.0 | 7.3 | 3.5 | 15.0 | 1.0 | 3.2 |
| 1-16 | 50.0 | 20.0 | 7.3 | 3.5 | 18.2 | 1.0 | |
| 1-17 | 50.0 | 25.0 | 7.3 | 3.5 | 10.0 | 1.0 | 3.2 |
| 1-18 | 60.0 | 15.0 | 7.3 | 3.5 | 10.0 | 1.0 | 3.2 |
| 1-19 | 60.0 | 15.0 | 7.3 | 3.5 | 13.2 | 1.0 | |
| 1-20 | 60.0 | 15.0 | 7.3 | 3.5 | 10.0 | 3.0 | 1.2 |

表 3 第二组玻璃的成分
Table 3 Compositions of the second group of glass formulas

| 配方 (Formulas) | w/% | | | | | | | | | | |
|---------------|------------------|-------------------------------|-------------------|-------------------|--------------------------------|-----|------------------|-----|-----|-----|--------------------------------|
| | SiO ₂ | B ₂ O ₃ | Na ₂ O | Li ₂ O | Al ₂ O ₃ | CaO | TiO ₂ | MgO | BaO | PbO | Fe ₂ O ₃ |
| 2-1 | 59.8 | 22.0 | 5.0 | 2.3 | 3.5 | 5.4 | 1.0 | | 1.0 | | |
| 2-2 | 59.8 | 22.0 | 5.0 | 2.3 | 3.5 | 3.4 | 1.0 | | 3.0 | | |
| 2-3 | 59.8 | 22.0 | 5.0 | 2.3 | 3.5 | 5.4 | 1.0 | | | 1.0 | |
| 2-4 | 59.8 | 22.0 | 5.0 | 2.3 | 3.5 | 3.4 | 1.0 | | | 3.0 | |
| 2-5 | 59.8 | 22.0 | 5.0 | | 3.5 | 5.4 | 1.0 | 1.0 | | | 2.3 |
| 2-6 | 59.8 | 22.0 | 3.0 | 2.3 | 3.5 | 5.4 | 1.0 | | | 3.0 | |
| 2-7 | 59.8 | 22.0 | | 2.3 | 3.5 | 5.4 | 1.0 | 1.0 | | 5.0 | |
| 2-8 | 59.8 | 22.0 | | 2.3 | 3.5 | 5.4 | 1.0 | 1.0 | | | 5.0 |
| 2-9 | 59.8 | 22.0 | | 2.3 | 3.5 | 5.4 | 1.0 | | | 1.0 | 5.0 |
| 2-10 | 59.8 | 22.0 | | 2.3 | 3.5 | 3.4 | 1.0 | | | 3.0 | 5.0 |
| 2-11 | 59.8 | 22.0 | | 2.3 | 3.5 | | 1.0 | | | 6.4 | 5.0 |
| 90Nd/10 | 59.8 | 22.0 | 5.0 | 2.3 | 3.5 | 5.4 | 1.0 | 1.0 | | | |

表 4 玻璃中包容的硫酸盐含量

Table 4 Sulfate content in the glass

| No. | w(SO ₃)/% | No. | w(SO ₃)/% |
|------|-----------------------|---------|-----------------------|
| 1-1 | 0.749 | 1-17 | 0.523 |
| 1-2 | 0.724 | 1-18 | 0.474 |
| 1-3 | 0.739 | 1-19 | 0.499 |
| 1-4 | 0.739 | 1-20 | 0.399 |
| 1-5 | 0.739 | 2-1 | 0.350 |
| 1-6 | 0.724 | 2-2 | 0.325 |
| 1-7 | 0.549 | 2-3 | 0.325 |
| 1-8 | 0.714 | 2-4 | 0.250 |
| 1-9 | 0.592 | 2-5 | 0.228 |
| 1-10 | 0.549 | 2-6 | 0.325 |
| 1-11 | 0.572 | 2-7 | 0.350 |
| 1-12 | 0.574 | 2-8 | 0.375 |
| 1-13 | 0.385 | 2-9 | 0.375 |
| 1-14 | 0.608 | 2-10 | 0.300 |
| 1-15 | 0.619 | 2-11 | 0.245 |
| 1-16 | 0.609 | 90Nd/10 | 0.325 |

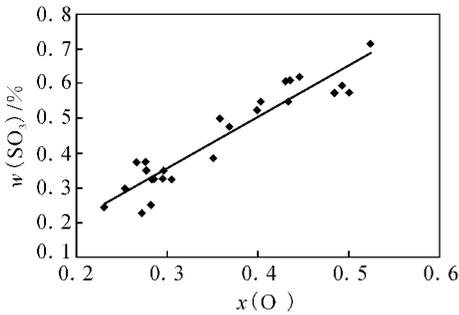


图 1 硫酸盐溶解度与非桥氧摩尔分数的关系

Fig.1 Relationship between sulfate solubility and $x(O^-)$

3.3 硫酸盐溶解度与 $x^2(O^-)/x(O^0)$ 的关系

玻璃组成参数还可以用 $x^2(O^-)/x(O^0)$ 来表示, $x(O^0)$ 是桥氧的摩尔分数, 可用玻璃中氧的总摩尔分数减去非桥氧摩尔分数来计算得到。将 $w(SO_3)$ 对 $x^2(O^-)/x(O^0)$ 作图示于图 2, 得到一条曲线, 两者的关系为对数关系。曲线的模型公式为 $w(SO_3) = -0.37 + 0.23 \ln(x^2(O^-)/x(O^0))$, $r^2 = 0.90$ 。

3.4 非桥氧摩尔分数与 $\ln(x^2(O^-)/x(O^0))$ 的关系

从图 1, 2 可看到硫酸盐溶解度与 $x(O^-)$ 和 $x^2(O^-)/x(O^0)$ 2 个玻璃组成参数都存在一定关系, 将 $x(O^-)$ 与 $\ln(x^2(O^-)/x(O^0))$ 作图示于图

3。由图 3 可知, $x(O^-)$ 与 $\ln(x^2(O^-)/x(O^0))$ 间存在线性关系, 直线拟合方程为 $y = -0.188 + 0.151x$, $r^2 = 0.997$ 。

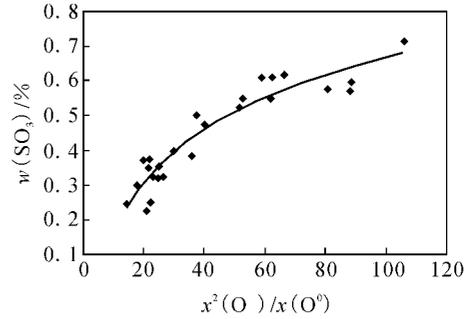


图 2 硫酸盐溶解度与玻璃组成参数 $x^2(O^-)/x(O^0)$ 间的关系

Fig.2 Relationship between sulfate solubility and $x^2(O^-)/x(O^0)$

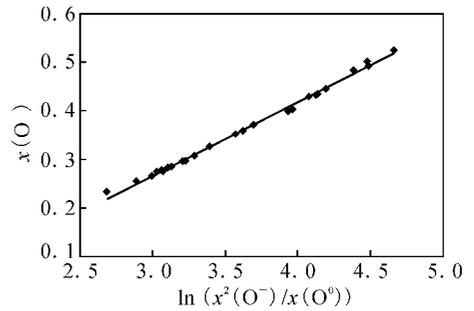


图 3 非桥氧摩尔分数 $x(O^-)$ 与 $\ln(x^2(O^-)/x(O^0))$ 间的关系

Fig.3 Relationship between $x(O^-)$ and $\ln(x^2(O^-)/x(O^0))$

因此可得出结论, 在多组分玻璃体系中硫酸盐溶解度与玻璃组成参数 $x(O^-)$ 或 $x^2(O^-)/x(O^0)$ 间存在一定关系, 用哪一种方法表示本质上没有区别。此模型是建立在 26 个数据点的基础上, 都是坩埚小试实验的结果, 配方选择上不受熔制温度下粘度需在特定范围内的限制, 此公式可以用来预计一些设定的配方对硫的包容能力。

3.5 溶解度模型的验证

从文献[11]选取一些配方对得出的溶解度模型进行验证。验证的配方组成及玻璃中三氧化硫质量分数的测定值 $w_{det}(SO_3)$ 和计算值 $w_{cal}(SO_3)$ 结果列入表 5。由表 5 可知, 计算值与试验测定值基本一致, 这 2 个公式可预计配方包容硫的能力。

4 结 论

建立了多组分玻璃体系中硫酸盐溶解度与玻璃组成参数间的模型公式。实验结果表明,硫酸盐溶解度分别与玻璃中的非桥氧浓度和玻璃组成参数 $x^2(O^-)/x(O^0)$ 的对数成正比。此模型公式与 Papadopoulos 所建立的公式不同,不再只适用于简单组分的玻璃体系。经文献验证,模型公式可较好的预计配方包容硫的能力。

致谢:中国原子能科学研究院周慧、姜耀中、汤宝龙、李宝军、李扬、徐建华等人在试验中给予了大力支持,在此表示感谢!

参考文献:

- [1] 罗上庚,蒲诗刚,姜耀中,等. 含高浓硫酸根的高放废液之玻璃固化配方研究[J]. 核科学与工程,1987, 7(3,4): 238-245.
- [2] 罗上庚,姜耀中,曲志敏,等. 高放玻璃固化过程硫走向的实验室研究[J]. 核化学与放射化学,1987, 9(1): 22-28.
- [3] Papadopoulos K. The Solubility of SO_3 in Soda-Lime-Silica Melts [J]. Phys Chem Glasses, 1973, 14(3): 60-65.
- [4] Ooura M, Hanada T. Compositional Dependence of Solubility of Sulphate in Silicate Glasses[J]. Glass Technol, 1998, 39(2): 68-73.
- [5] Pegg I, Gan H, Muller I S, et al. Summary of Preliminary Results on Enhanced Sulfate Incorporation During Vitrification of LAW Feeds, VSL-00R3630-1 [R]. Vitreous State Laboratory, The Catholic University of America, 2000.
- [6] Li H, Hrma P, Vienna J D. Sulfate Retention and Segregation in Simulated Radioactive Waste Borosilicate Glasses[J]. Am Ceram Soc, 2001: 237-245.
- [7] Kielpinski A L. Applications of Atomistic Simulation to Radioactive and Hazardous Waste Glass Formulation Development[C]// Waste Management '95, Tucson, AZ, United States; Westinghouse Savannah River Co, Aiken, SC, United States. 1995.
- [8] Mysen B O, Virgo D, Scarfe C M, et al. Viscosity and Structure of Iron- and Aluminum-Bearing Calcium Silicate Melts at 1 Atm[J]. Am Mineral, 1985, 70(5-6): 487-498.
- [9] Smets B M J, Krol D M. Group III Ions in Sodium Silicate Glass: Part 1. X-ray Photoelectron Spectroscopy Study[J]. Phys Chem Glasses, 1984, 25(5): 113-118.
- [10] Konijnendijk W L. Structural Differences Between Borosilicate and Aluminosilicate Glasses Studied by Raman Scattering [J]. Glastechn Ber, 1975, 48(10): 216-218.
- [11] Peeler D K, Herman C C, Smith M E, et al. An Assessment of the Sulfate Solubility Limit of the Frit 418 - Sludge Batch 2/3 System, WSRC-TR-2004-00081 [R]. Revision 0, Westinghouse Savannah River Company, Aiken, South Carolina, 2004.