

水泥基体结构异质性多重分形分析与模拟

蒋燕伟¹, 奚亚男^{2*}

¹中铁四局集团有限公司, 安徽 合肥

²河海大学力学与材料学院, 江苏 南京

收稿日期: 2022年9月6日; 录用日期: 2022年9月22日; 发布日期: 2022年9月29日

摘要

水泥基体由具有不规则几何形貌的组分无序堆积而成, 在空间维度上呈现出典型的结构异质性。本文以不同养护龄期(7 d, 28 d)的普通硅酸盐水泥净浆为例, 基于X射线计算机断层扫描(X-ray Computed Tomography, XCT)技术获取其三维灰度图像。针对水泥基体的三维结构, 以局部孔隙率为指标开展多重分形分析。结果表明, 多重分形分析对于定量描述水泥基体结构异质性具有很好的适用性。此外, 本文提出利用一般化二项迭代方法模拟水泥基体的结构异质性。

关键词

水泥基体, 结构异质性, X射线计算机断层扫描, 多重分形分析, 一般化二项迭代方法

Multifractal Analysis and Modeling of Structural Heterogeneity in Cement Paste

Yanwei Jiang¹, Yanan Xi^{2*}

¹China Railway No. 4 Engineering Group Co., Ltd., Hefei Anhui

²College of Mechanics and Materials, Hohai University, Nanjing Jiangsu

Received: Sep. 6th, 2022; accepted: Sep. 22nd, 2022; published: Sep. 29th, 2022

Abstract

Cement paste is comprised of anhydrous clinkers and hydrates of irregular morphology, which manifests an intrinsic structural heterogeneity in spatial domain. Taking ordinary Portland cement paste cured at 7 d and 28 d into account, we use the X-ray Computed Tomography (XCT) to acquire their 3-dimensional structural features. With the 3-dimensional XCT images as input, the multifractal analysis is performed based on a definition of local porosity. Results indicate that the

*通讯作者。

2.2. XCT 实验

如图 1 所示, 本文采用的实验仪器是德国制造的蔡司 Xradia 510 型 X 射线显微镜, 主要由微焦点射线源、精密样品台、高分辨率探测器、控制以及成像单元所组成。该仪器包含两级放大系统, 第一级是传统的 X 射线几何放大, 第二级是将 X 射线经闪烁体转化为可见光之后用镜头进行的光学放大, 由此得以在较大样品尺寸、较远工作距离下实现亚微米级的空间分辨率。X 射线扫描待测样品时, 材料局部的 X 射线吸收系数存在差异, 投射至探测器上对应不同的像素灰度值。对于水泥净浆样品, 一般认为 X 射线吸收系数即像素灰度值与局部材料密度成正比关系。

XCT 图像的空间分辨率和像素对比度受到射线功率和样品尺寸的影响。一方面, 较高的射线功率提高空间分辨率, 但降低像素对比度; 另一方面, 更薄的样品导致更高质量的图像。应当注意的是, 当样品太薄时, 其图像会在厚度方向上受到边壁效应的影响, 无法代表真正的水泥浆体。本文所有扫描均以 60 kV 的 X 射线峰值能量和 83 μA 的电流进行, 样品距射线源和探测器分别为 14 mm、80 mm。每次扫描获得 1601 帧二维 XCT 图像, 每个投影的采集时间为 6 s, 像素的空间分辨率为 1 μm 以及像素灰度值变化范围为 0~255。如图 2 所示, 顺序截取 128 帧二维 XCT 图像($128 \times 128 \mu\text{m}^2$), 将其重构成三维 XCT 图像($128 \times 128 \times 128 \mu\text{m}^3$)。图 3 所示为重构后的胶凝体系三维 XCT 图像, 其中灰度值已做归一化处理。

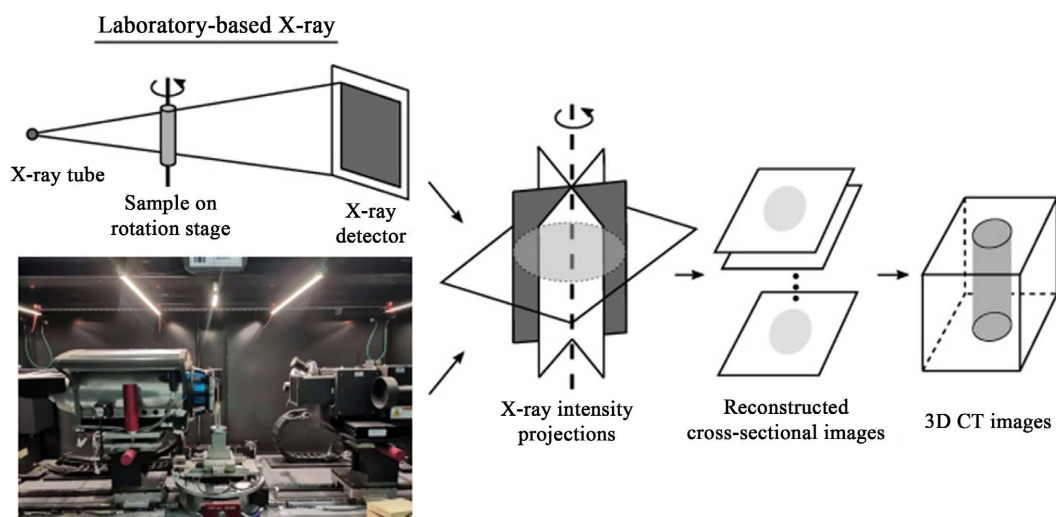


Figure 1. Xradia 510 X-ray microscopy and schematic of work principle

图 1. Xradia 510 型 X 射线显微镜及工作原理示意图

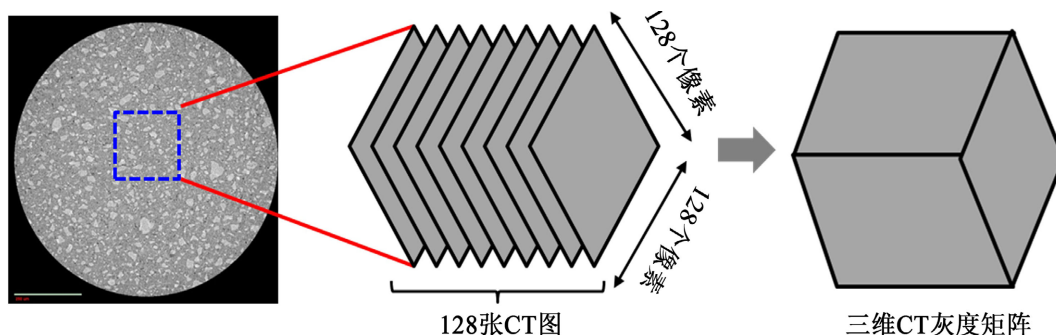


Figure 2. Schematic of 3D XCT image reconstructed from 2D XCT images

图 2. 三维 XCT 图像重构示意图

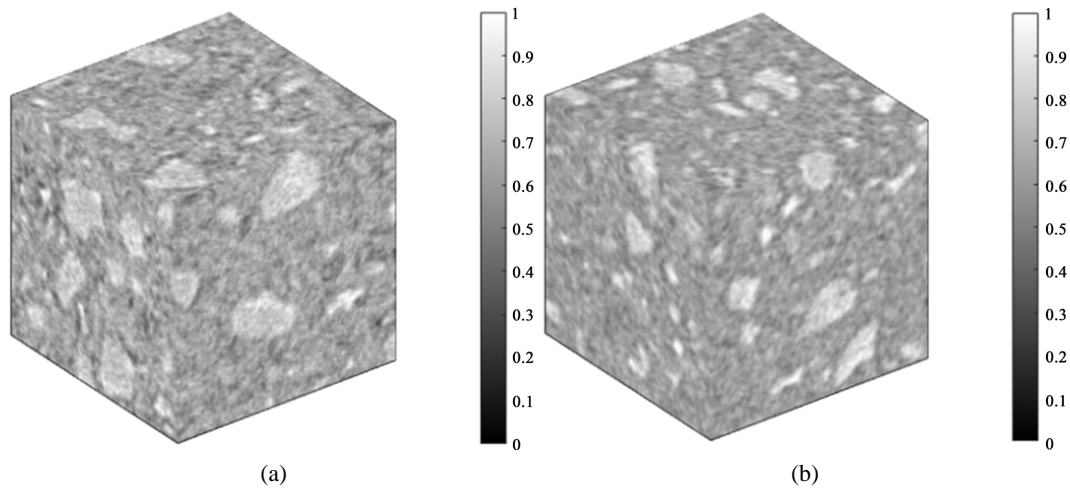


Figure 3. 3D XCT image of cement paste at a curing age of (a) 7 d; (b) 28 d
图 3. 不同养护龄期的水泥浆体三维 XCT 图像(a) 7 d; (b) 28 d

3. 多重分形理论

Mach 等从随机过程角度考虑, 将研究对象视为有限单元的集合, 并构建函数 Φ 关联起概率测度与空间尺度如下[16]:

$$\Phi(q, \tau) = \sum_{i=1}^N \frac{p_i^q}{\delta_i^\tau} \quad (1)$$

N 为单元数目, q, τ 为实数变量, p_i, δ_i 为单元 i 对应的概率测度、空间尺度。对于多重分形, 满足 $\Phi(q, \tau) = 1$ 。取 $\delta_i = \delta$, 结合式(1), 则有

$$\chi(q) = \sum_{i=1}^N p_i^q \propto \delta^{\tau(q)} \quad (2)$$

$\chi(q)$ 、 $\tau(q)$ 称为配分函数、尺度函数。式(2)构成以 q 为基本变量的多重分形表达式, 相应地, 也可以取 $p_i = p$ 建立以 τ 为基本变量的多重分形表达式。 q 的取值不同, 对应 p_i 对 χ 的贡献不同。具体地, 当 q 为负值时, p_i 越小, 对 χ 的贡献越大; 当 q 为正值时, p_i 越大, 对 χ 的贡献越大。将 q 视为自变量, 对 χ 求一阶导数, 则有

$$\sum_{i=1}^N (p_i^q \ln p_i) \propto \delta^{\tau(q)} \ln \delta \frac{d\tau(q)}{dq} \quad (3)$$

引入 α 满足

$$\sum_{i=1}^N (p_i^q \ln p_i) = \sum_{i=1}^N [p_i^q \ln(\delta^{\alpha(q)})] \quad (4)$$

将式(4)、式(2)代入到式(3), 则有

$$\alpha(q) = \frac{d\tau(q)}{dq} \quad (5)$$

$\alpha(q)$ 称为奇异指数或者 Hölder 指数, 满足 $\alpha_{\min} \leq \alpha \leq \alpha_{\max}$, 其中 $\alpha_{\min} = \alpha(q \rightarrow +\infty)$, $\alpha_{\max} = \alpha(q \rightarrow -\infty)$ 。Hölder 指数 α 直接联系着概率测度 p_i 与空间尺度 δ , 即

$$p_i^{law} = \delta^\alpha \tag{6}$$

具有 Hölder 指数为 α 的单元数目

$$N_\alpha = N \cdot \delta^{-f(\alpha)} \tag{7}$$

$f(\alpha)$ 称为 Hausdorff 维数。 $f(\alpha)$ 、 $\alpha(q)$ 以及 $\tau(q)$ 不是互相独立的, 满足

$$f(\alpha) = q(\alpha) \cdot \alpha - \tau[q(\alpha)] \tag{8}$$

$f(\alpha)$ 对 α 的函数关系称为多重分形谱。

4. 多重分形分析

对于三维 XCT 图像, 假定每个像素包含凝胶孔和毛细孔, 其对应的局部孔隙率 f_v 定义如下:

$$f_v = \frac{1 - h_v}{1 - \langle h_v \rangle} f_c \tag{9}$$

$h_v \in [0,1]$ 代表像素的归一化灰度值, $\langle \rangle$ 代表关于图像内所有像素的平均值, f_c 为整体孔隙率。当 $h_v = 1$ 时, $f_v = 0$; 当 $h_v = 0$ 时, $f_v = f_c / (1 - \langle h_v \rangle)$ 以及 $\langle f_v \rangle = f_c$ 。

如图 4 所示, 在多重分形分析中, 将三维 XCT 图像划分成不同空间尺度的立方体单元。对于每个立方体单元, 其对应的概率测度 p_i 的计算式如下:

$$p_i = \frac{\sum f_v}{\sum_i f_v} \tag{10}$$

\sum_i 代表对单元 i 包含的像素求和, \sum 代表对 XCT 图像包含的所有像素求和, 显然有 $\sum p_i = 1$ 。

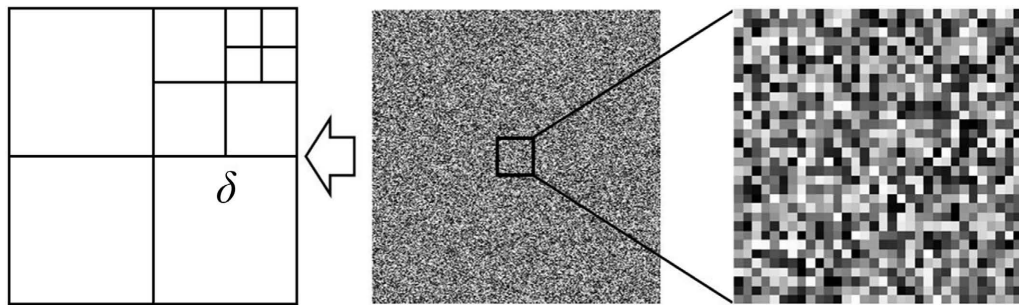


Figure 4. Schematic of the multifractal analysis on a digital image
图 4. 关于 XCT 图像的多重分形分析示意图

常用的多重分形分析方法包括 Stanley 和 Meakin 提出的矩方法[10], Chhabra 和 Jensen 提出的直接法 [17]以及 Arnéodo 等使用的小波系数法[18] [19]。本文使用直接法, 即

$$\alpha = \lim_{\delta \rightarrow 0} \frac{\sum_i \{ \mu_i(q, \delta) \cdot \ln(p_i) \}}{\ln \delta} \tag{11}$$

$$f(\alpha) = \lim_{\delta \rightarrow 0} \frac{\sum_i \{ \mu_i(q, \delta) \cdot \ln[\mu_i(q, \delta)] \}}{\ln \delta} \tag{12}$$

$\mu_i(q, \delta)$ 称为单元 i 的归一化概率测度, 其计算式如下:

$$\mu_i(q, \delta) = \frac{p_i^q}{\sum_i p_i^q} \quad (13)$$

5. 多重分形模拟

在多重分形模拟领域, 有属于网格迭代类的, 如 Saucier 提出的网格基几何多重分形[20], Perfect 等提出的二项分布 Sierpinski 毯[21], Cheng 提出的一般化二项迭代方法[22]; 以及属于随机过程类的, 包括 Barral 和 Mandelbrot 提出的复合泊松迭代[23], Muzy 和 Bacry 提出的多重分形随机行走[24], Chainais 提出的无限可分迭代[25]。本文采用 Cheng 提出的一般化二项迭代方法模拟水泥基体的多重分形结构异质性。

考虑三维 Euclidean 空间中具有单位长度的立方体迭代元, 在每个维度上将其 h 等分, 即有总共 h^3 个长度为 $1/h$ 的立方体小单元, 并对所有小单元分配概率测度: 先随机选取 m_1 个, 每个分配 w_1/m_1 的概率测度; 再随机选取 m_2 个, 每个分配 w_2/m_2 的概率测度; 满足 $m_1 + m_2 \leq h^3$ 及 $w_1 + w_2 = 1$ 。历经 j 次迭代后, 单元的概率测度

$$p(j, k) = (w_1/m_1)^k (w_2/m_2)^{j-k}; k = 0, \dots, j \quad (14)$$

相应地, 具有概率测度 $p(j, k)$ 的单元数目

$$N(j, k) = m_1^k m_2^{j-k} \binom{j}{k} \quad (15)$$

将式(14)、式(15)代入式(2), 配分函数

$$\chi(q, j) = (m_1^{1-q} w_1^q + m_2^{1-q} w_2^q)^j \quad (16)$$

以及尺度函数

$$\tau(q) = -\frac{\ln(m_1^{1-q} w_1^q + m_2^{1-q} w_2^q)}{\ln h} \quad (17)$$

Hölder 指数 α 和 Hausdorff 维数 $f(\alpha)$ 则满足

$$\alpha(q) = -\frac{\xi \ln(w_1/m_1) + (1-\xi) \ln(w_2/m_2)}{\ln h} \quad (18)$$

$$f[\alpha(q)] = -\frac{\xi \ln(\xi/m_1) + (1-\xi) \ln[(1-\xi)/m_2]}{\ln h} \quad (19)$$

其中

$$\xi = \frac{m_1^{1-q} w_1^q}{m_1^{1-q} w_1^q + m_2^{1-q} w_2^q} \quad (20)$$

6. 结果与讨论

6.1. 结构异质性分析

取 q 值遍历 $[-30, 30]$, 由式(11)、式(12)计算多重分形谱, 如图 5 所示。不难发现, 水泥基体呈现出典型的多重分形结构异质性, 即具有清晰可辨的“吊钟型”多重分形谱。考虑 $\delta \rightarrow 0$, 由式(6)、式(10)可知: α_{\max} 对应着局部孔隙率 f_v 的极小值, α_{\min} 对应着局部孔隙率 f_v 的极大值; 以 Euclidean 维数 3 为基准, $\alpha > 3$ 对应着局部孔隙率 f_v 的较小值(即凝胶孔), $\alpha < 3$ 对应着局部孔隙率 f_v 的较大值(即毛细孔)。在

多重分形理论中, 通常使用谱宽 $\Delta\alpha = \alpha_{\max} - \alpha_{\min}$ 作为结构异质性的量化指标。具体地, 随水泥基体的养护龄期增加(7 d \rightarrow 28 d), 其多重分形谱变宽(0.98 \rightarrow 1.01), 对应着局部孔隙率 f_v 分布范围的展宽; 考虑 $\delta \rightarrow 0$, 由式(7)可知: $f(\alpha > 3)$ 增大, 表明含有较小局部孔隙率 f_v 的单元数目增多, 即凝胶孔逐渐增多; $f(\alpha < 3)$ 减小, 表明含有较大局部孔隙率 f_v 的单元数目减少, 即毛细孔逐渐减少。鉴于多重分形理论无需设定凝胶孔和毛细孔的具体几何形貌, 因此在描述水泥基体孔隙结构变化方面具有很好的适用性。

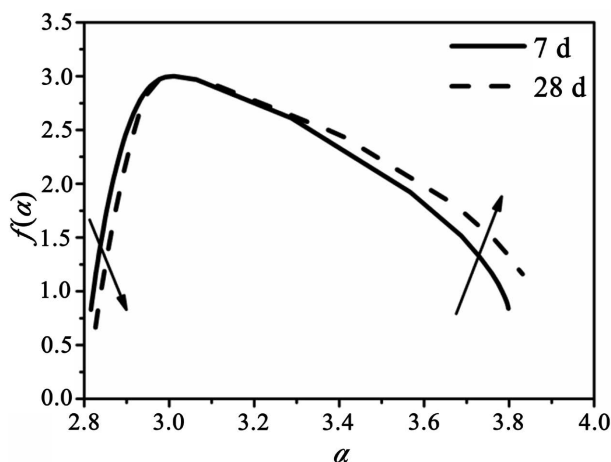


Figure 5. Multifractal spectrum of (7 d, 28 d) cured cement paste
图 5. 不同养护龄期(7 d, 28 d)的水泥基体多重分形谱

6.2. 结构异质性模拟

Cheng 提出的一般化二项迭代方法模拟多重分形结构异质性涉及 5 个参数, 即 h 、 m_1 、 m_2 、 w_1 、 w_2 。具体求解包含 3 个步骤。首先, 从图 5 中读取 $f(\alpha_{\max})$ 、 $f(\alpha_{\min})$ 、 α_{\max} 、 α_{\min} 等特征量的数值; 其次, 依据式 (21)

$$\begin{cases} m_1 = \exp[f(\alpha_{\max}) \ln h] \\ m_2 = \exp[f(\alpha_{\min}) \ln h] \\ h = (m_1 + m_2)^{\frac{1}{3}} \end{cases} \quad (21)$$

结合牛顿迭代法求解参数 h 、 m_1 、 m_2 以及式(22)

$$\begin{cases} w_1 = m_1 h^{-\alpha_{\max}} \\ w_2 = m_2 h^{-\alpha_{\min}} \end{cases} \quad (22)$$

求解参数 w_1 、 w_2 ; 最后, 将参数 h 、 m_1 、 m_2 、 w_1 、 w_2 的数值代入式(18)、式(19)即得到水泥基体的模拟多重分形谱。如图 6 所示, 一般化二项迭代方法较好地多重分形谱的整体形状(“吊钟型”)进行模拟, 但是在精度上存在一定的不足。

7. 结论

本文结合 XCT 技术和多重分形理论定量描述水泥基体的结构异质性。鉴于多重分形理论在胶凝体系研究领域尚未得到广泛应用, 本文从随机过程角度介绍多重分形理论的一般概念。在此基础上, 从 XCT 灰度图像出发, 定义水泥基体的局部孔隙率, 对结构异质性进行多重分形分析(直接法)和模拟(一般化二项迭代方法)。主要结论如下:

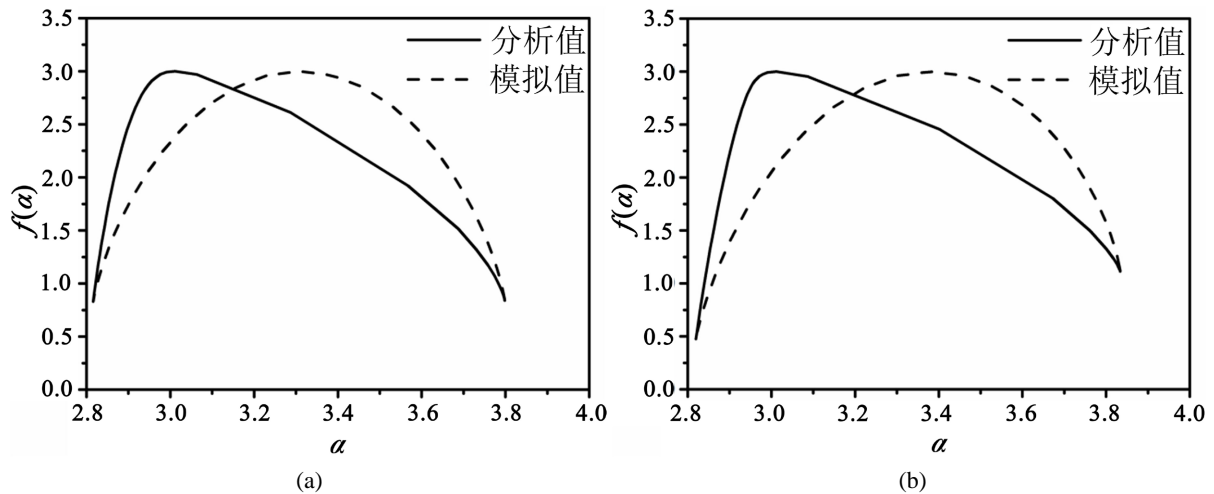


Figure 6. Analyzed and modeled multifractal spectrum of cement paste at a curing age of (a) 7 d; (b) 28 d

图 6. 不同养护龄期的水泥基体多重分形谱分析值与模拟值对比(a) 7 d; (b) 28 d

1) 水泥基体呈现出典型的多重分形结构异质性, 即具有清晰可辨的“吊钟型”多重分形谱。随水泥基体的养护龄期增加, 多重分形谱变宽。

2) 一般化二项迭代方法较好地对多重分形谱的整体形状(“吊钟型”)进行模拟, 但是在精度上存在一定的不足。

参考文献

- [1] Winslow, D.N. (1985) The Fractal Nature of the Surface of Cement Paste. *Cement and Concrete Research*, **15**, 817-824. [https://doi.org/10.1016/0008-8846\(85\)90148-6](https://doi.org/10.1016/0008-8846(85)90148-6)
- [2] Lange, D.A., Jennings, H.M. and Shah, S.P. (1994) Image Analysis Techniques for Characterization of Pore Structure of Cement-Based Materials. *Cement and Concrete Research*, **24**, 841-853. [https://doi.org/10.1016/0008-8846\(94\)90004-3](https://doi.org/10.1016/0008-8846(94)90004-3)
- [3] Zeng, Q., Li, K.F., Chong, T.F. and Dangla, P. (2010) Surface Fractal Analysis of Pore Structure of High-Volume Fly-Ash Cement Pastes. *Applied Surface Science*, **257**, 762-768. <https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2010.07.061>
- [4] Liu, X., Feng, P., Li, W., Geng, G., Huang, J., Gao, Y., Mu, S. and Hong, J. (2021) Effects of pH on the Nano/Micro Structure of Calcium Silicate Hydrate (C-S-H) under Sulfate Attack. *Cement and Concrete Research*, **140**, Article ID: 106306. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2020.106306>
- [5] Gao, Y., Li, W. and Yuan, Q. (2021) Modeling the Elastic Modulus of Cement Paste with X-Ray Computed Tomography and a Hybrid Analytical-Numerical Algorithm: The Effect of Structural Heterogeneity. *Cement and Concrete Composites*, **122**, Article ID: 104145. <https://doi.org/10.1016/j.cemconcomp.2021.104145>
- [6] Zhang, H., *et al.* (2019) Experimentally Informed Micromechanical Modelling of Cement Paste: An Approach Coupling X-Ray Computed Tomography and Statistical Nanoindentation. *Composites Part B: Engineering*, **157**, 109-122. <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2018.08.102>
- [7] Jiang, N., *et al.* (2020) 3D Finite Element Modeling of Water Diffusion Behavior of Jute/PLA Composite Based on X-Ray Computed Tomography. *Composites Science and Technology*, **199**, Article ID: 108313. <https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2020.108313>
- [8] Kim, J.S., *et al.* (2019) Issues on Characterization of Cement Paste Microstructures from μ -CT and Virtual Experiment Framework for Evaluating Mechanical Properties. *Construction and Building Materials*, **202**, 82-102. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2019.01.030>
- [9] Gao, Y., Jiang, J., De Schutter, G., Ye, G. and Sun, W. (2014) Fractal and Multifractal Analysis on Pore Structure in Cement Paste. *Construction and Building Materials*, **69**, 253-261. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2014.07.065>
- [10] Stanley, H.E. and Meakin, P. (1988) Multifractal Phenomena in Physics and Chemistry. *Nature*, **335**, 405-409. <https://doi.org/10.1038/335405a0>

-
- [11] Esquivel, F.J., Alonso, F.J. and Angulo, J.M. (2017) Multifractal Complexity Analysis in Space-Time Based on the Generalized Dimensions Derivatives. *Spatial Statistics*, **22**, 469-480. <https://doi.org/10.1016/j.spasta.2017.07.014>
- [12] Paz-Ferreiro, J., *et al.* (2018) Soil Texture Effects on Multifractal Behaviour of Nitrogen Adsorption and Desorption Isotherms. *Biosystems Engineering*, **168**, 121-132. <https://doi.org/10.1016/j.biosystemseng.2018.01.009>
- [13] Valentini, L., Artioli, G., Voltolini, M. and Dalconi, M.C. (2012) Multifractal Analysis of Calciumsilicate Hydrate (C-S-H) Mapped by X-Ray Diffraction Microtomography. *Journal of the American Ceramic Society*, **95**, 2647-2652. <https://doi.org/10.1111/j.1551-2916.2012.05255.x>
- [14] Gao, Y., Gu, Y., Mu, S., Jiang, J. and Liu, J. (2021) The Multifractal Property of Heterogeneous Microstructure in Cement Paste. *Fractals*, **29**, Article ID: 2140006. <https://doi.org/10.1142/S0218348X21400065>
- [15] Paggi, M. and Carpinteri, A. (2009) Fractal and Multifractal Approaches for the Analysis of Crack-Size Dependent Scaling Laws in Fatigue. *Chaos Solitons and Fractals*, **40**, 1136-1145. <https://doi.org/10.1016/j.chaos.2007.08.068>
- [16] Mach, J., Mas, F. and Sagues, F. (1995) Two Representations in Multifractal Analysis. *Journal of Physics A—Mathematical and General*, **28**, 5607-5622. <https://doi.org/10.1088/0305-4470/28/19/015>
- [17] Chhabra, A.B. and Jensen, R.V. (1989) Direct Determination of the $f(\alpha)$ Singularity Spectrum. *Physical Review Letters*, **62**, 1327-1330. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.62.1327>
- [18] Arneodo, A., Decoster, N. and Roux, S.G. (2000) A Wavelet-Based Method for Multifractal Image Analysis. I. Methodology and Test Applications on Isotropic and Anisotropic Random Rough Surfaces. *The European Physical Journal B*, **15**, 567-600. <https://doi.org/10.1007/s100510051161>
- [19] Decoster, N., Roux, S.G. and Arneodo, A. (2000) A Wavelet-Based Method for Multifractal Image Analysis. II. Applications to Synthetic Multifractal Rough Surfaces. *The European Physical Journal B*, **15**, 739-764. <https://doi.org/10.1007/s100510051179>
- [20] Saucier, A. (1992) Effective Permeability of Multifractal Porous Media. *Physica A*, **183**, 381-397. [https://doi.org/10.1016/0378-4371\(92\)90290-7](https://doi.org/10.1016/0378-4371(92)90290-7)
- [21] Perfect, E., Gentry, R.W., Sukop, M.C. and Lawson, J.E. (2006) Multifractal Sierpinski Carpets: Theory and Application to Upscaling Effective Saturated Hydraulic Conductivity. *Geoderma*, **134**, 240-252. <https://doi.org/10.1016/j.geoderma.2006.03.001>
- [22] Cheng, Q. (2014) Generalized Binomial Multiplicative Cascade Processes and Asymmetrical Multifractal Distributions. *Nonlinear Processes in Geophysics*, **21**, 477-487. <https://doi.org/10.5194/npg-21-477-2014>
- [23] Barral, J. and Mandelbrot, B. (2002) Multiplicative Products of Cylindrical Pulses. *Probability Theory and Related Fields*, **124**, 409-430. <https://doi.org/10.1007/s004400200220>
- [24] Muzy, J. and Bacry, E. (2002) Multifractal Stationary Random Measures and Multifractal Random Walks with Log-Infinately Divisible Scaling Laws. *Physical Review E*, **66**, Article ID: 056121. <https://doi.org/10.1103/PhysRevE.66.056121>
- [25] Chainais, P. (2006) Multidimensional Infinitely Divisible Cascades. Application to the Modelling of Intermittency in Turbulence. *The European Physical Journal B*, **51**, 229-243. <https://doi.org/10.1140/epjb/e2006-00213-y>