第 54 卷第 3 期
2026 年 3 月

硅 酸 盐 学 报
JOURNAL OF THE CHINESE CERAMIC SOCIETY

Vol. 54，No. 3
March，2026

http://jccsoc.cbpt.cnki.net

DOI：10.14062/j.issn.0454-5648.20250724

水化铝硅酸钙织构模型与跨尺度力学性能演化机理

周 傲[1]，卓靖博[1]，余泽川[2]，王振宇[2]，刘铁军[1]

(1. 广东省土木工程智能韧性结构重点实验室，哈尔滨工业大学(深圳)，广东 深圳 518055；
2. 武汉理工大学土木工程与建筑学院，湖北 武汉 430070)

摘 要：水化铝硅酸钙(CASH)是铝掺杂水泥体系的主要黏结相，其纳米尺度的本征力学性能从根本上决定了宏观水泥基材料的性能上限，理解跨尺度构效关系有助于设计 CASH 性能提升策略。本工作旨在提出 CASH 由单晶到多晶的织构建模方法，阐明多尺度结构演化、Ca/Si 与 Al/Si 耦合作用及多态水对 CASH 物理与力学性能的影响。开发了一种将粗粒化模型映射为全原子模型的跨尺度算法，由随机取向的 CASH 颗粒组成，展现出与实验一致的结构特征。分子动力学模拟表明，结构均质化是 CASH 由纳米尺度各向异性向亚微米尺度各向同性演化的根本机制。CASH 亚微米结构在 Ca/Si 为 1.50、Al/Si 为 0.10 时力学性能最优，进一步提高 Ca/Si 会因桥联 Si　O 键减少而降低强度，而增加 Al/Si 对硅链连接和骨架影响有限。CASH 的内聚力依赖颗粒间的接触，湿度作用下晶界区域的吸附水转变为自由水，削弱颗粒间内聚力，使强度降低超 40.80%。在原子尺度上促进了对 CASH 亚微米多晶结构与力学行为的认识，有助于开发可持续、长寿命的水泥基材料。

关键词：水化铝硅酸钙；织构模型；多尺度；力学性能；分子动力学
中图分类号：TU528.57　　**文献标志码**：A　　**文章编号**：0454–5648(2026)03–0922–13
网络出版时间：2026–02–10

水泥基材料是目前世界上用途最广、用量最大的建筑材料[1–4]，然而水泥生产过程中原料分解和燃煤会排放大量的 CO_2，约占全球碳排放量的 8%[5–6]。为提升水泥基材料的可持续性，使用粉煤灰、煅烧黏土、硅灰、再生粉体、高炉矿渣等辅助胶凝材料(SCMs)部分替代水泥[7–9]，可以显著减少胶凝材料的碳排放。此外，SCMs 会改变水泥胶凝体系水化产物的种类与占比、孔隙结构等，进而影响长期强度与耐久性[10–11]。在富含 SCMs 的水泥基体系中，主要水化产物为水化铝硅酸钙(CASH)[12–13]，其纳米尺度力学行为在根本上决定了宏观性能，如强度、收缩、徐变以及离子传输等。因此，深入研究 CASH 的分子结构及纳米尺度力学行为，对于进一步优化水泥基材料性能至关重要，并为可持续水泥基胶凝材料的设计提供理论支持。

CASH 与普通硅酸盐水泥的主要黏结相水化硅酸钙(CSH)相似[14–17]，其独特之处在于分子骨架中掺入了铝。基于托贝莫来石晶体结构，CSH 的原子结构及模型得到了发展[18–27]。然而，由于铝的化学环境复杂且位置多变，对 CASH 结构的理解仍有限。实验与密度泛函理论计算表明，CASH 中铝酸盐可呈四配位、五配位和六配位[28–29]，关于这 3 种配位铝在 CASH 分子结构中的具体位置仍存在争议，其中铝主要以四配位形式取代硅链的桥位，当铝含量较高时更有利于形成位于层间区域的五配位和六配位铝。此外，CASH 的结构特征与 Ca/Si 和 Al/Si 比密切相关[30–32]，Ca/Si 与 Al/Si 的耦合作用进一步增加了研究的复杂性。

针对纳米尺度 CASH 结构的研究已取得系列进展。Li 等[33]通过高通量原子计算表明，单晶 CASH 的微观结构与力学性能受 Ca/Si 与 Al/Si 耦合作用的影响，适当增加 Al/Si 可促进硅链聚合并提高刚度，而过高的 Ca/Si 会导致结构无序并降低刚度。Hou 等[34–35]研究发现，Al 的掺入可促进 CASH 中 Al—O—Si 交联结构的形成，从而增强层间内聚力，提升层间薄弱区域的力学性能。纳米尺度 CASH 呈

收稿日期：2025–09–29。　修订日期：2025–11–09。
基金项目：国家杰出青年科学基金(52025081)；国家自然科学基金面上项目(52379121)；深圳市科技计划(RCYX20231211090319018)。
第一作者：周 傲(1991)，男，博士，教授。
通信作者：刘铁军(1976)，男，博士，教授。

Received date: 2025–09–29.　**Revised date:** 2025–11–09.
First author: ZHOU Ao (1991–), male, Ph.D., Professor.
E-mail: zhouao@hit.edu.cn
Correspondent author: LIU Tiejun (1976–), male, Ph.D., Professor.
E-mail: liutiejun@hit.edu.cn

现由硅链骨架层与富钙/铝离子水层交替组成的层状结构，表现出明显的各向异性。在宏观尺度上，水泥基材料通常可被视为各向同性的均质体系。然而，水泥基材料由各向异性向各向同性转变的尺度及转变机理仍未明确。

水泥基材料的性能跨越从微观到宏观的多个空间与时间尺度。协同分子动力学模拟、粗粒化模型和精细化有限元分析，可实现 CASH—净浆—混凝土体系的“自下而上”多尺度建模与模拟[36]。在多尺度与跨尺度模拟框架中，核心在于实现本构关系、孔隙结构等关键特征参数的信息传递。在数十至数百纳米的亚微米尺度，CASH 可视为由约 5 nm 尺度的颗粒堆积形成[37]，这一尺度是连接纳米尺度分子模拟与微米尺度力学实验的关键桥梁[38]，对于揭示 CASH 的多尺度结构与性能演化规律至关重要。目前，大多数建模与计算研究仍集中于纳米尺度或单一界面，未能充分解决亚微米尺度问题，从而限制了对 CASH 在更大尺度下力学行为的理解。研究表明，通过开发粗粒化模型能有效描述 CASH 的亚微米结构[39]，但缺乏全原子模型的详细结构信息，难以刻画复杂力学行为。因此，粗粒化模型需要在计算精度上改进，将粗粒度模型映射回全原子模型是改进计算精度的一种良好选择。将粗粒化模型映射为全原子模型升尺度算法的研究在不同领域已有较多探索，但现有工作主要集中于其他材料体系，如蛋白质、高分子聚合物等[40–41]。针对水泥体系中 CASH 织构模型的升尺度重构研究仍较有限。

本工作开发了 CASH 由单晶到多晶的织构建模方法，研究了 Ca/Si 与 Al/Si 耦合作用及多态水对 CASH 物理与力学性能的影响，并提出一种用于构建全原子 CASH 亚微米结构的建模算法，该算法通过对碟形粗粒化模型进行沃罗诺伊(Voronoi)分析，并将粗粒化模型重新映射为全原子模型。对 CASH 织构模型开展了透射电子显微镜(TEM)成像和 X 射线衍射(XRD)谱的模拟，并与实验结果进行对比，验证了亚微米模型的合理性。采用反应力场模拟了单晶及多晶 CASH 在不同方向的力学行为，通过边界可能性原子、断裂模式等分析，揭示了 CASH 分子结构各向异性向各向同性转变的机制。此外，研究了 Ca/Si 与 Al/Si 的耦合作用以及晶界区域水对 CASH 亚微米结构稳定性以及力学性能的影响。本研究促进了对纳米到亚微米尺度 CASH 分子结构—力学性能关系的理解，为设计低碳、高性能的水泥基材料提供理论支持。

1　方法

1.1　亚微米尺度 CASH 织构模型

扫描电子显微镜[42]、TEM[43]以及 Jennings 提出的 CM-Ⅱ纳米颗粒理论框架表明[37]，CASH 是由约 5 nm 大小的层状颗粒组装而成。此外，原子力显微镜、小角中子散射及高压 X 射线衍射实验揭示了 CASH 的微观结构特征[44–46]，包括表面粗糙度、层状结构及堆积密度等，为建立 CASH 织构模型提供了可靠的实验依据。CASH 单晶结构采用 Li 等[33]开发的程序 CASHgen 构建，其平均链长、层间距、配位数及弹性模量等材料特性与实验结果一致，构建了 5 组不同的 CASH 单晶结构用于多晶模型，涵盖 Ca/Si 为 1.30、1.50 和 1.70，以及 Al/Si 为 0.05、0.10 和 0.15，具体包括样品 C1.50_A0.05、样品 C1.50_A0.10、样品 C1.50_A0.15、样品 C1.30_A0.15 和样品 C1.70_A0.15(其中 C 代表 Ca/Si，A 代表 Al/Si)，以探究 Ca/Si 与 Al/Si 之间的耦合作用。

本工作提出了一种用于 CASH 亚微米结构的建模算法，该算法本质上是将粗粒化模型映射回全原子模型的过程，建立的 CASH 织构模型是以实验观测到的片状颗粒取向特征为基础，如图 1a 所示[47]。由于 CASH 的纳米结构具有高度异质性与可变性，球形与碟形基本单元之间的界限在实际中往往并不明显[48]。通过碟形粗粒化颗粒的紧密堆积确定其取向分布，从而在建模中合理体现实验所观察到的颗粒取向特征，具体包括以下步骤：1)构建由碟形颗粒堆积而成的粗粒化模型。碟形颗粒用于表征 CASH 的层状结构，其尺寸设定为 $a = b = 5.0$ nm、$c = 1.0$ nm，与全原子 CASH 颗粒的特征尺度一致，并赋予不同取向。颗粒间相互作用由盖伊泊尼尔(Gay-Berne, GB)势函数[49]描述，使体系趋于致密化。最终建立了包含 27 个碟形颗粒的粗粒化模型，如图 1b 所示；2)通过沃罗诺伊(Voronoi)分析确定每个碟形颗粒所覆盖的多面体，Voronoi 划分将空间分割为多个不规则区域，每个区域对应一个碟形颗粒，结合碟形颗粒的取向信息，可进一步确定各多面体的顶点、边和面，如图 1c 所示，与直接采用随机 Voronoi 划分构建的模型相比[50]，该方法具有物理合理性与取向信息保留特征，通过碟形颗粒表征 CASH 的层状结构，并利用 GB 势函数考虑颗粒间相互作用，使体系在能量驱动下实现致密堆积，从而体现颗粒间的物理关联与堆积规律。同时，在划分前通过粗粒化建模确定碟形颗粒取向，使生成的多面体既满

足 Voronoi 空间划分要求，又保留片状颗粒的取向随机性；3)将 Voronoi 划分得到的每个多面体作为基础，从一个足够大的单晶 CASH 模型中切割出对应块体，并根据碟形颗粒的取向进行旋转，如图 1d 所示，在碟形粗粒化模型的构建过程中发现，稀疏堆积状态下的盘状颗粒在生成 Voronoi 单元时表现出类似球形颗粒的特征，此时 CASH 超晶胞呈较高球形度，可视为由多层结构组成的球状体，而在紧密堆积状态下，颗粒取向效应显著，生成的 Voronoi 多面体趋于扁平，因此，无论是稀疏堆积还是紧密堆积形成的结构，均可在对应实验中观察到的多尺度无序特征，真实反映 CASH 在不同致密度条件下的微观形貌特征；4)将所有 CASH 块体组合，构建织构模型，其中，每个 CASH 块体的取向继承自其对应的粗粒化片状颗粒的取向，如图 1e 所示，对单晶堆积后的模型进行弛豫，得到致密状态的全原子 CASH 亚微米结构，通过调节 CASH 单晶的 Ca/Si 与 Al/Si，可实现任意 Ca/Si 与 Al/Si 耦合模型的智能设计。此外，开发的织构模型可以有效区分 CASH 的晶粒与晶界，如图 1f 所示。通过对所有多面体进行迭代，可在晶界区域生成具有特定厚度的水层，如图 1g 所示。通过调控晶界区域水层厚度，可研究 CASH 在不同水含量与状态下的物理和力学性能，如图 1h 所示。

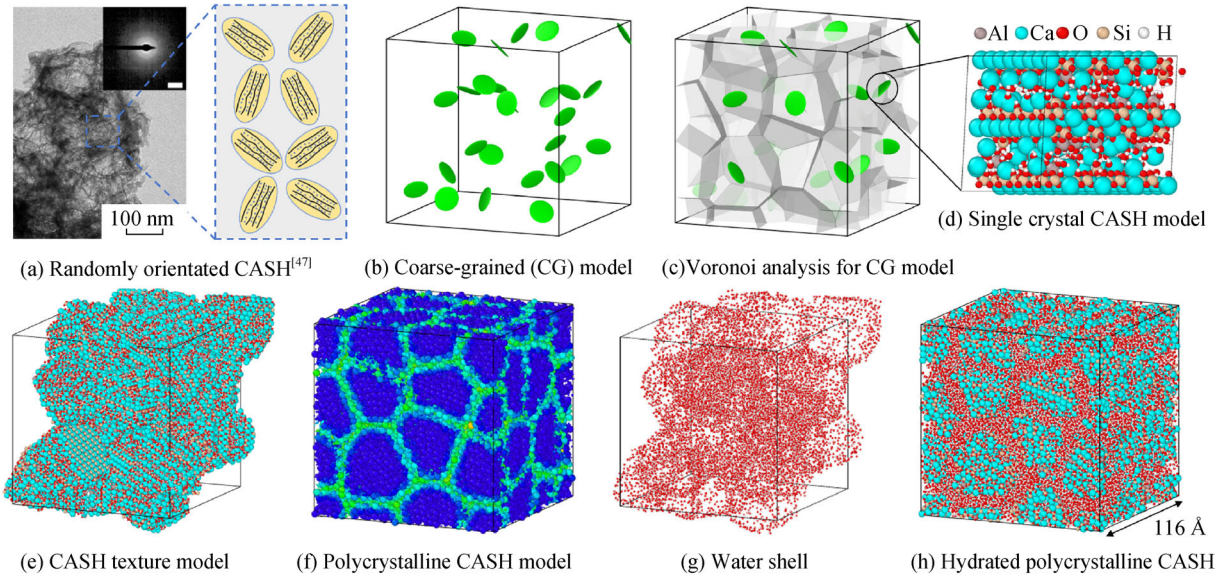


图 1 亚微米尺度 CASH 织构模型建模示意图

Fig. 1 Schematic diagram of the sub-micron CASH texture model

1.2 分子动力学模拟

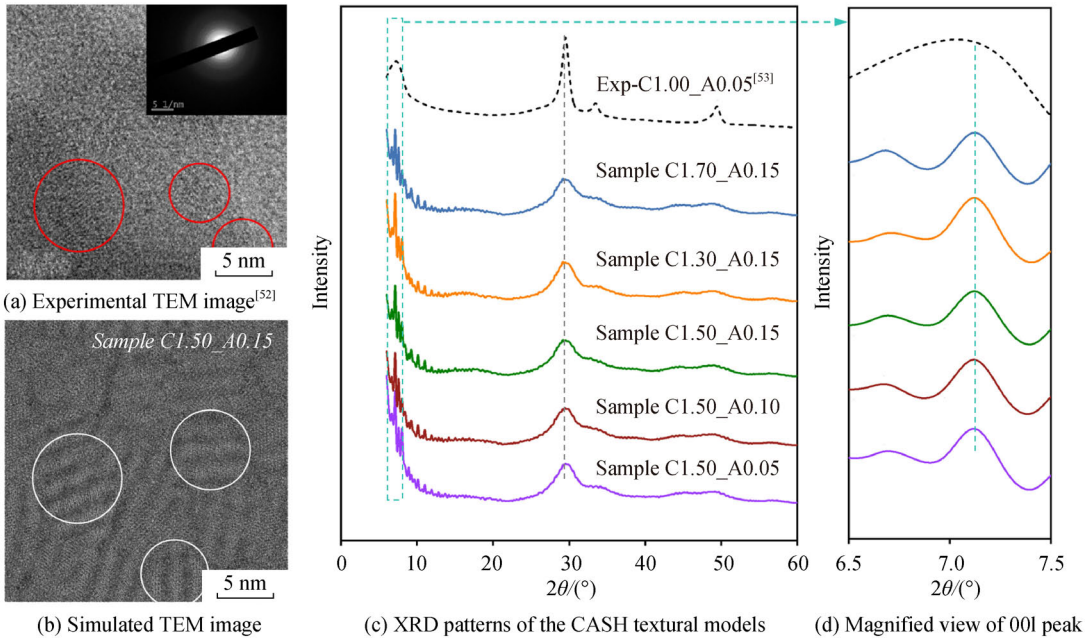
在粗粒化指导建模过程中，采用 GB 势函数模拟碟形颗粒的堆积。在全原子 CASH 模拟中使用了 ReaxFF 力场(反应力场)[51]，能够有效描述键的形成与断裂以及原子间的电荷转移。亚微米 CASH 在进行变形测试前，首先在等温等压(NPT)系综下进行 1 ns 的平衡，弛豫温度控制为 300 K、压强控制为 0.10 MPa。采用能势-胡佛(Nosé-Hoover)热浴法对体系温度进行调控。通过 LAMMPS 软件中 fix deform 命令模拟了 CASH 拉伸变形测试，运行时间为 500 ps，拉伸速率约为 0.02 nm/ps，实现稳定收敛的拉伸变形过程。模拟了耦合 Ca/Si 与 Al/Si 体系的 XRD 谱，采用铜靶 X 射线(波长 1.54 Å)计算其衍射特性，并在 $2\theta = 6°\sim60°$范围内生成相应图谱。

2 结果与讨论

2.1 CASH 织构模型验证

图 2 为亚微米尺度 CASH 织构模型验证。由图 2a 可见，合成的纯 CASH 在 TEM 下表现出典型的关键结构特征[52]，包括层状结构、约 5 nm 的特征尺寸及颗粒间不同取向。由图 2b 可见，每个原子的半径根据其原子质量重新缩放，并使用灰度图模拟成像。由于重原子的存在，CASH 层呈现较暗颜色，而层间显示较亮颜色。模拟结果显示，CASH 亚微米结构能够捕捉到与实验 TEM 图像一致的结构特征，即约 5 nm 的分层纳米颗粒组装体，展示出明显的多晶结构特征。图 2c~图 2d 为 5 种 CASH 织构模型的 XRD 模拟谱，并与已有实验结果进行

对比[53]，以验证所建立亚微米结构的合理性。CASH 的 XRD 谱通常以无定形弥散散射为主，在低角区($2\theta \approx 7°\sim8°$)出现的衍射峰与层间距密切相关，其位置和强度会随环境湿度、温度及水含量变化而改变。此外，在 $2\theta \approx 30°$附近常出现 1 个宽的主峰，反映了硅酸盐链的短程有序特征。基于局部极值的峰值识别方法，织构模型能够有效捕捉 CASH 的关键结构特征，模拟 XRD 在 $2\theta = 7.13°$ 和 $2\theta = 29.48°$均呈现出 CASH 典型的主峰信号。模拟结果表明，在 $2\theta = 7.13°$处的衍射峰中，当 Ca/Si 摩尔比固定为 1.50 时，随着 Al/Si 从 0.05 增加至 0.10 和 0.15，该衍射峰强度相较于 Al/Si 为 0.05 时分别降低了 14.30%和 16.40%，其主要原因是随着 Al/Si 增大，Al^{3+}进入层间导致层间距增大，从而降低了衍射峰的强度。当 Al/Si 固定为 0.15 时，Ca/Si 的变化同样显著影响峰强度：Ca/Si 降低至 1.30 时峰强度增强，而 Ca/Si 升高至 1.70 时峰强度减弱，这表明 Ca/Si 通过调节层间 Ca 含量，影响 CASH 的层间结构，从而对衍射峰强度产生显著作用。对于 $2\theta = 29.48°$的衍射峰，也呈现类似趋势，但强度变化幅度较小，其中样品 C1.50_A0.15 相较于样品 C1.50_A0.05 的峰强度下降了 6.30%，这主要是由于 Al/Si 升高导致单晶 CASH 的结晶度降低，从而削弱了峰强度。



(a) Experimental TEM image[52]　(b) Simulated TEM image　(c) XRD patterns of the CASH textural models　(d) Magnified view of 00l peak

图 2　亚微米尺度 CASH 织构模型验证

Fig. 2　Validation of the sub-micron scale CASH texture model

2.2　纳米尺度 CASH 单晶结构的各向异性

本节研究了单晶 CASH 在不同方向的拉伸性能，Ca/Si 为 1.50、Al/Si 为 0.15。对单晶 CASH 在 *X*、*Y*、*Z* 3 个方向进行了拉伸测试，结果表明，CASH 在 *X*、*Y* 方向拉伸应变为 1.00 时仍具有良好的延展性，不易发生断裂，如图 3a~图 3f 所示，这是由于 Al 占据桥联位点，形成 Al—O—Si 或 Ca—O—Si 键，通过强共价键作用连接硅酸链。相比之下，CASH 在 *Z* 方向的结构主要由较弱的范德华相互作用控制，外力作用下破坏首先发生在层间，表现出类似脆性断裂的特征，如图 3g 所示。峰值应力下的体积应变进一步证实了 *Z* 方向的薄弱区域为层间，并成为裂缝萌生的起始位置，如图 3h 所示。综合拉伸应力—应变曲线结果，CASH 在 *Z* 方向的力学性能显著弱于 *X*、*Y* 方向，呈现出明显的各向异性特征，如图 3i 所示。经 *X* 射线衍射、核磁共振等微观实验证实[54–55]，CASH 的分子结构中存在缺失的桥联硅四面体和层状特征，纳米尺度下其内在的随机缺陷与高度可变性共同决定了材料力学性能的各向异性。

2.3　亚微米尺度 CASH 结构的各向同性

对亚微米尺度 CASH 在 *X*、*Y*、*Z* 3 个方向进行了拉伸测试，Ca/Si 为 1.50、Al/Si 为 0.15，其应力—应变曲线在 3 个方向上基本一致，如图 4e 所示。结果表明，CASH 在亚微米尺度呈现各向同性特征，不同方向的拉伸峰值应力均约为 3.50 GPa。为进一

步探究其破坏过程，本工作引入了一种“边界可能性”原子属性，用于区分晶粒与晶界区域，其中，边界可能性为 0 表示原子位于单晶内部。与单晶结构相比，多晶 CASH 的破坏模式存在显著差异。

图 4 为亚微米尺度 CASH 分子结构各向同性研究。图 4a~图 4c 为 CASH 在 X 方向破坏的全过程，最终形成不规则断裂面。图 4d 进一步揭示了 CASH 织构模型的典型破坏模式，可分为穿晶断裂与晶界断裂，其中，穿晶断裂通常需要更强外力才能发生。

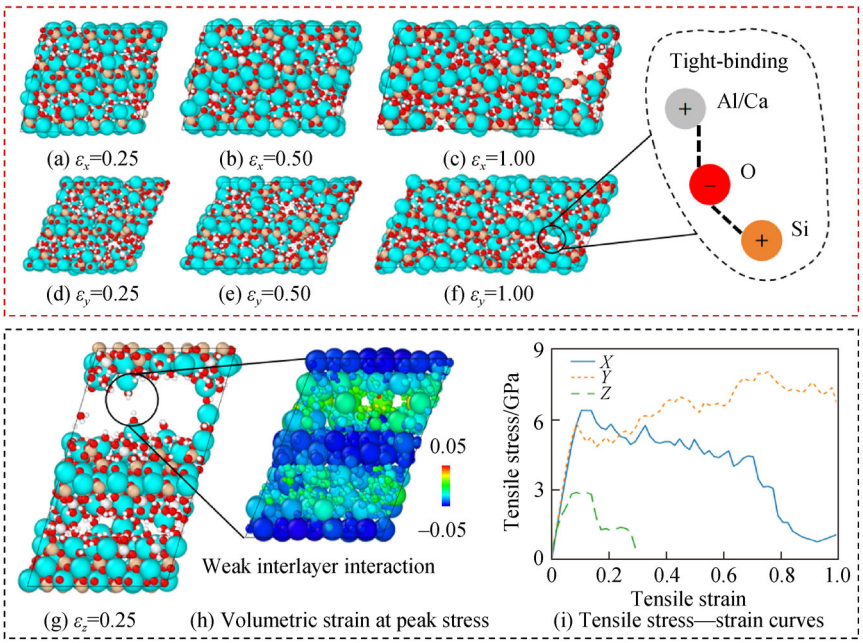


图 3 纳米尺度 CASH 分子结构各向异性研究

Fig. 3 Anisotropy of CASH structure at the nanoscale

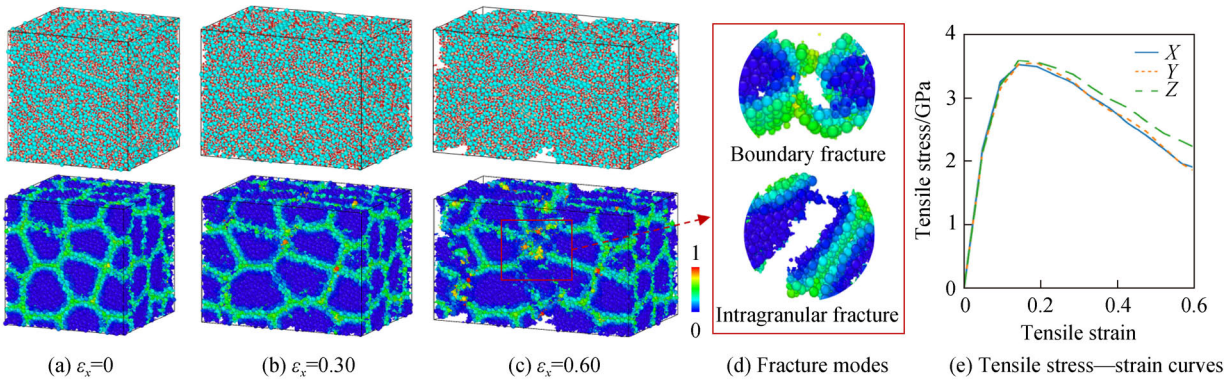


图 4 亚微米尺度 CASH 分子结构各向同性研究

Fig. 4 Isotropy of CASH structure at the sub-micron scale

本工作揭示了结构均质化是 CASH 由纳米尺度各向异性向亚微米尺度各向同性转变的根本机制。单晶 CASH 的力学性能具有显著方向依赖性，而亚微米尺度的 CASH 由无序堆积的单晶组成。无序结构通过对纳米尺度非均质性的空间统计平均，消除了层间方向的脆弱性，从而表现出各向同性。为验证这一点，对 X、Y、Z 3 个方向断裂时的晶界原子进行了边界可能性直方图与体积应变散点图统计。

图 5 为纳米到亚微米尺度 CASH 分子结构各向异性的演化机制。由图 5a~图 5c 可见，晶界区域原子在不同方向的分布基本一致，断裂时的体积应变分布也较均匀，说明各方向缺陷区域分布均衡，进一步分析峰值应变分布结果，如图 5d~图 5f 所示，CASH 在不同受力方向上体积应变整体均匀，微裂

纹主要萌生于晶界区域。

在利用粗粒化模型构建亚微米尺度 CASH 分子时，如图 5g 所示，单晶模型继承了原始粗粒化颗粒的取向并在体系中随机分布，从而消除了单晶在层间的突出弱点，结果表明，单晶的随机堆积是亚微米 CASH 表现各向同性的关键原因，这一现象在氧化物玻璃、金属玻璃、无定形固体及胶体凝胶等无序体系中普遍存在[56]，结构无序度的增大会驱动材料的结构均质化过程，揭示了局部能垒在控制非晶材料各向同性转变中的关键作用。

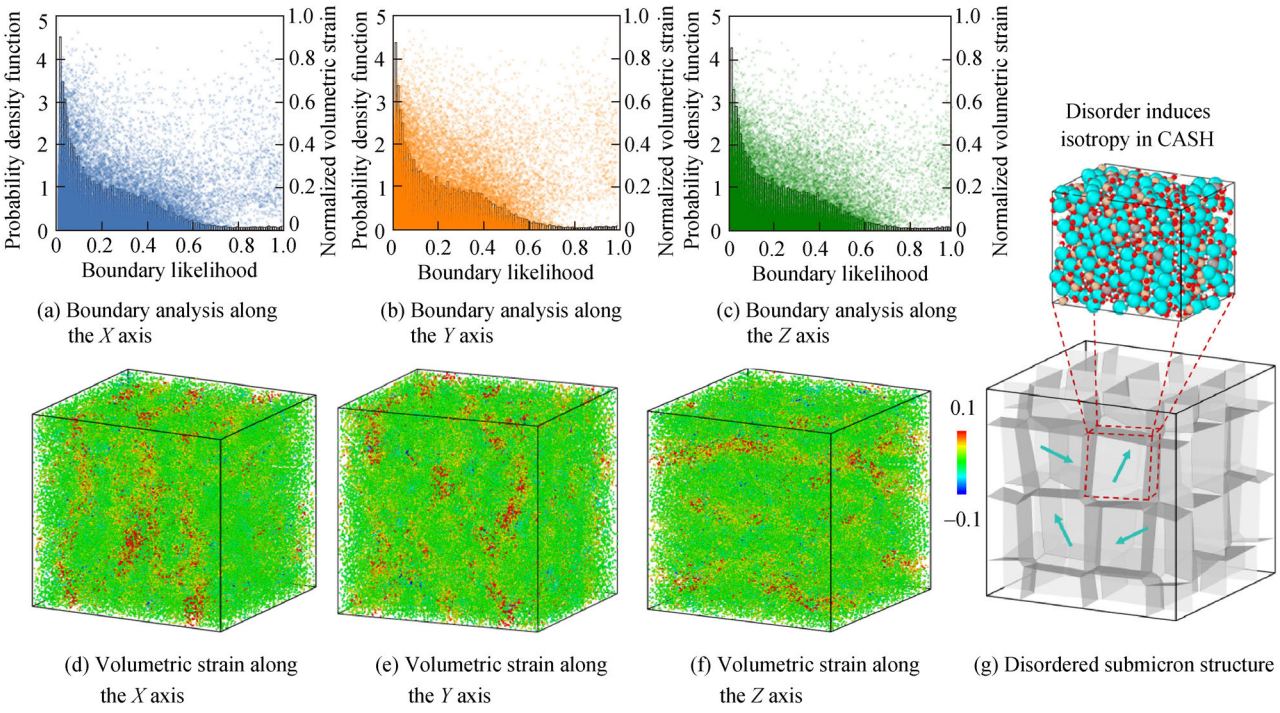


图 5　纳米到亚微米尺度 CASH 分子结构各向异性的演化机制

Fig. 5　Mechanism of the evolution of CASH molecular structure anisotropy from nanoscale to sub-micron scale

2.4　Ca/Si 与 Al/Si 耦合作用对 CASH 拉伸性能的影响

目前，关于 Ca/Si 与 Al/Si 的研究多数集中在约 5 nm 尺度的单晶 CASH 模型，主要关注其原子尺度的结构与力学特征。相比之下，织构模型更能够体现颗粒间的堆积、取向及相互作用效应，从而揭示多晶 CASH 体系的力学响应规律。本工作进一步分析了不同 Ca/Si 与 Al/Si 比值下紧密堆积 CASH 织构模型的力学性能，探讨了两者在亚微米尺度下的耦合效应。

CASH 亚微米结构表现出各向同性，因此，图 6 仅展示其在 X 轴方向峰值应力下的体积应变及最终断裂模式。由图 6a~图 6d 可见，各组 CASH 亚微米结构的体积应变总体均匀，而晶界区域的体积应变相对较大。在图 6e~图 6h 中，样品 C1.50_A0.15 的结果见图 4，可见裂面呈不规则形状，表明断裂过程中存在一定比例的穿晶断裂。此外，随着 Ca/Si 与 Al/Si 的变化，不同 CASH 的断裂模式存在差异，这与体系中化学键的数量及分布特征密切相关：Ca—O 和 Al—O 键增加能够增强硅酸链间及层间的连接，提高局部断裂能，使材料更易发生穿晶断裂，从而呈现不规则断裂面，如图 6i 所示。

为揭示不同 Ca/Si 与 Al/Si 耦合作用下 CASH 的结构—性能关系，图 7 统计了各体系中 Al—O、Ca—O 及 Si—O 键的数量，并分析了亚微米 CASH 的拉伸应力—应变关系。由图 7a 可见，Ca/Si 与 Al/Si 对 CASH 的拉伸性能具有显著影响，当 Ca/Si 固定为 1.50 时，随着 Al/Si 从 0.05 增加至 0.10 和 0.15，Al 的引入显著提升了 CASH 的力学性能，其中，Al/Si 为 0.10 与 0.15 时性能差异不大；当 Al/Si 固定为 0.15 时，对比 Ca/Si 为 1.30、1.50 和 1.70 的情况而言，CASH 的力学性能呈先升高后下降的趋势；Ca/Si 为 1.30 时杨氏模量和峰值拉伸强度均较低；而 Ca/Si 为 1.70 时性能较 Ca/Si 为 1.50 略有下降。高压 X 射线衍射研究表明[57]，铝取代可诱导三联(Dreierketten)链的交联，增加电荷平衡钙的数量并强化氢键体系；然而，当铝取代桥位硅进入非交联

的铝硅酸链时，会在 *ab* 平面引起结构软化效应，从而导致 CASH 的本征体积模量降低。

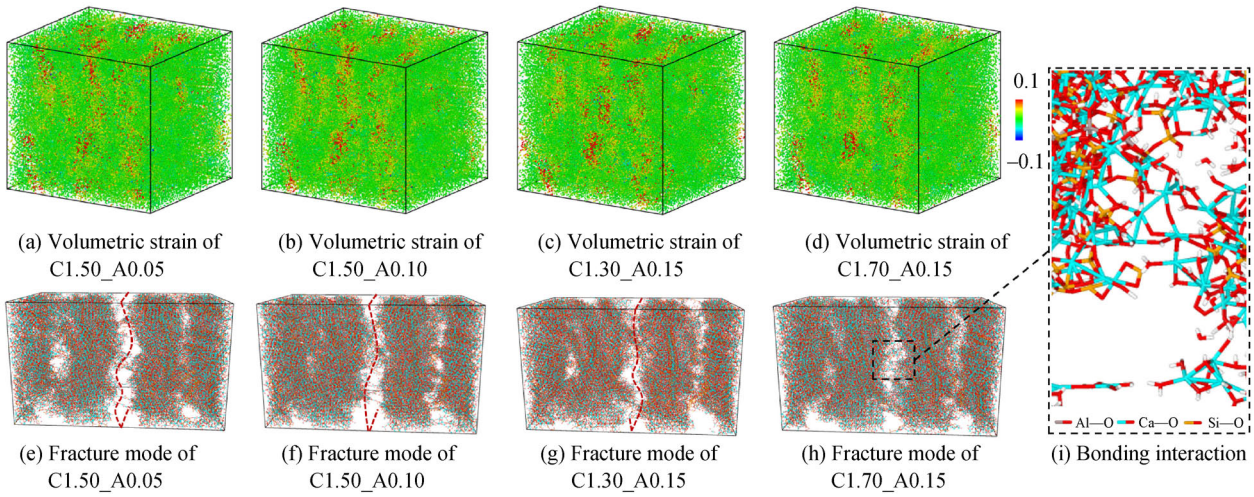
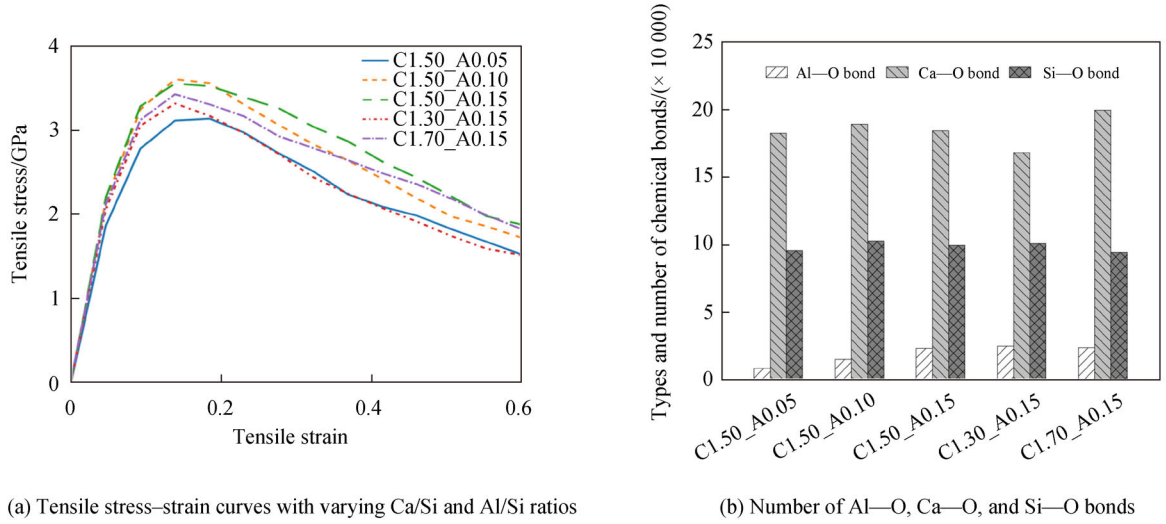


图 6 不同 Ca/Si 与 Al/Si 下 CASH 的体积应变分布及拉伸断裂模式

Fig. 6 Volumetric strain distribution and tensile fracture modes of CASH under varying Ca/Si and Al/Si



(a) Tensile stress–strain curves with varying Ca/Si and Al/Si ratios

(b) Number of Al—O, Ca—O, and Si—O bonds

图 7 不同 Ca/Si 与 Al/Si 下 CASH 的拉伸行为及主要化学键数量

Fig. 7 Tensile behavior and key bond counts of CASH under varying Ca/Si and Al/Si

当 Ca/Si 固定时，随着 Al/Si 从 0.05 增加至 0.10 和 0.15，力学性能先增大后趋于稳定，主要原因在于 Al/Si 从 0.05 增大到 0.10 时，Al—O 键数量增加，连接硅酸链的桥位增多，原子结构致密化，层间得到强化，如图 7b 所示。而当 Al/Si 增至 0.15 时，尽管 Al 仍能提供桥接作用，但过量引入会促使次生矿物(如钙铝黄长石、石榴石)析出，使力学性能提升受限，因此，Al/Si 为 0.10 与 0.15 时的性能接近，这与文献报道一致[58]。当 Al/Si 固定时，CASH 的力学性能随 Ca/Si 由 1.30 增至 1.50 呈上升趋势，但在 Ca/Si 为 1.70 时略有下降，这可解释为当 Ca/Si 为 1.30 时，层间 Ca 原子不足，硅酸链连接较弱，随 Ca/Si 增加，硅酸链通过更多 Ca—O 键相连，增强了结构强度，然而在 Ca/Si 为 1.70 时，图 7b 显示 Ca—O 键进一步增多而 Si—O 键减少，桥联硅原子减少，导致硅酸链连续性受损，裂纹更易沿晶界或层间扩展，从而削弱了结构稳定性。

此外，织构模型可进一步耦合 CASH 在空间分布上的多种参数，如 Al/Si、Ca/Si、孔隙率以及水的含量与状态，从而更真实地反映 CASH 中铝的化学环境及配位状态对力学性能的影响。

2.5 水对 CASH 拉伸性能的影响

组成 CASH 的水分子具有复杂多变的物理状态，在温度、湿度等环境作用下，其数量、位置及状态会发生显著变化[59]，从而直接影响微观结构演化，并进一步对其力学性能产生重要影响。图 1 所

示的 CASH 织构模型建模算法能够调控晶界区域水层厚度，实现对层间水、吸附水和自由水的量化。在晶界区域分别引入厚度为 0.2 nm、0.3 nm 和 0.4 nm 的水层，如图 8a~图 8b 所示。吸附水指吸附在 CASH 颗粒表面的水分子，通常距离颗粒表面约 0.3 nm[60]，如图 8c 所示。对干燥条件下不同 Ca/Si 与 Al/Si 体系的 CASH 水质量分数进行统计发现，各模型的层间水质量分数均约为 10%，与已有研究结果基本一致[52]，如图 8d 所示。

为研究水对 CASH 结构稳定性及力学性能的影响，统计了不同水层厚度下亚微米 CASH 中各类水的质量分数，如图 8e 所示。当水层厚度为 0 时，CASH 颗粒紧密接触，仅存在层间水；当水层厚度为 0.2 nm 或 0.3 nm 时，晶界区域主要由吸附水占据；当水层厚度增至 0.4 nm 时，吸附水含量保持基本稳定，而自由水含量逐渐增加。本工作提出的建模算法为揭示不同状态水对 CASH 的作用机制提供了可靠的模型支撑。

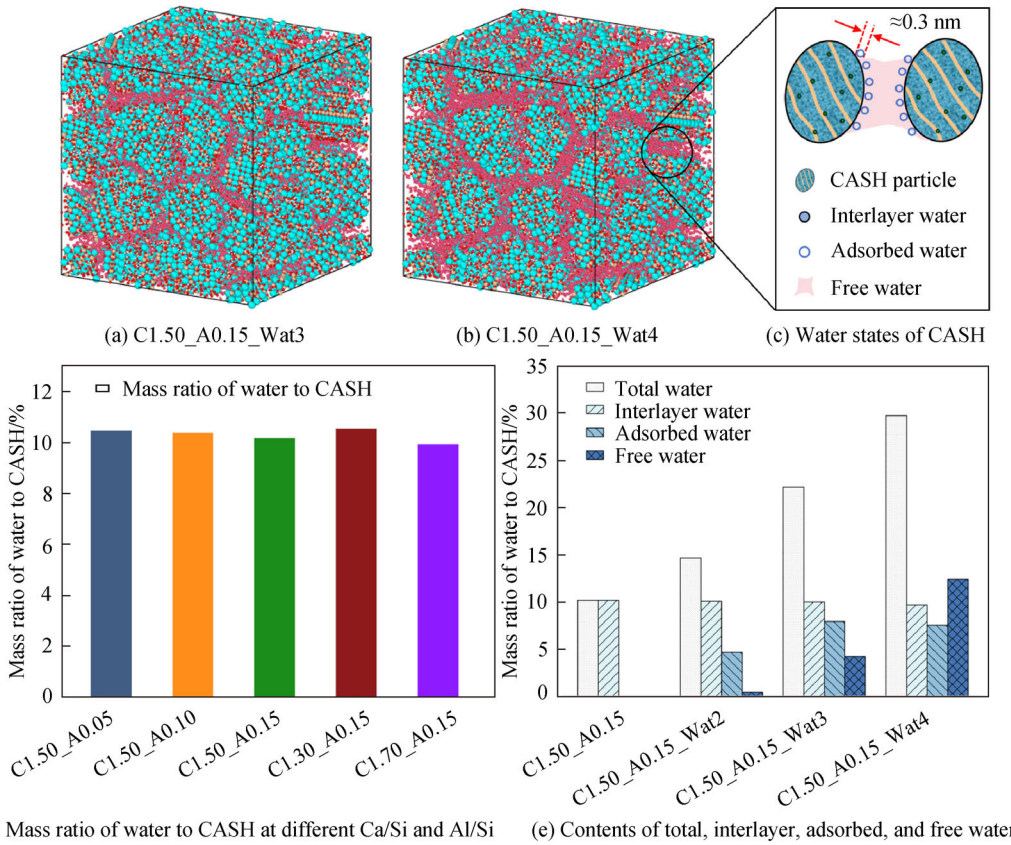


图 8　亚微米尺度 CASH 中不同类型水的分布、质量分数随晶界区域水层厚度的变化

Fig. 8　Distribution and mass fraction of different types of water in sub-micron CASH with varying interfacial water shell thickness

本工作研究了不同水状态下 CASH 在 X 方向的拉伸性能(见图 9g)。结果表明，随着晶界区域水层厚度的增加，CASH 的拉伸性能显著降低，这是因为水阻碍了相邻 CASH 颗粒之间的紧密接触，使晶界区域成为裂纹萌生的薄弱点，这一现象在 CSH 的研究中亦得到验证。Manzano 等[25]将 CSH 颗粒视为由水层分隔的刚性块体，揭示了水分流动性削弱内聚力的机制。Liang 等[61]的分子模拟结果表明，纳米孔限域水会降低 C-S-H 的整体力学性能，且随水含量增加，其破坏模式由穿晶断裂逐渐转变为晶界断裂。

在峰值应力下的体积应变也验证了这一点，晶界区域的体积应变明显高于晶粒区域，如图 9a~图 9c 所示。即使颗粒表面仅存在 0.2 nm 厚的水层，相较于图 4c 中的干燥状态，CASH 的性能仍显著下降，并且断裂模式由穿晶断裂转变为晶界断裂。在不同水状态下，CASH 均表现为以晶界断裂为主，如图 9d~图 9f 所示。

通过边界可能性分析，包括晶界区域原子的分布直方图以及晶界断裂时原子体积应变的散点图，进一步揭示了晶界区域水层对 CASH 力学性能的影响机制。

图 10 为不同水状态下亚微米 CASH 的边界可能性直方图以及边界可能性与断裂时体积应变散点图。

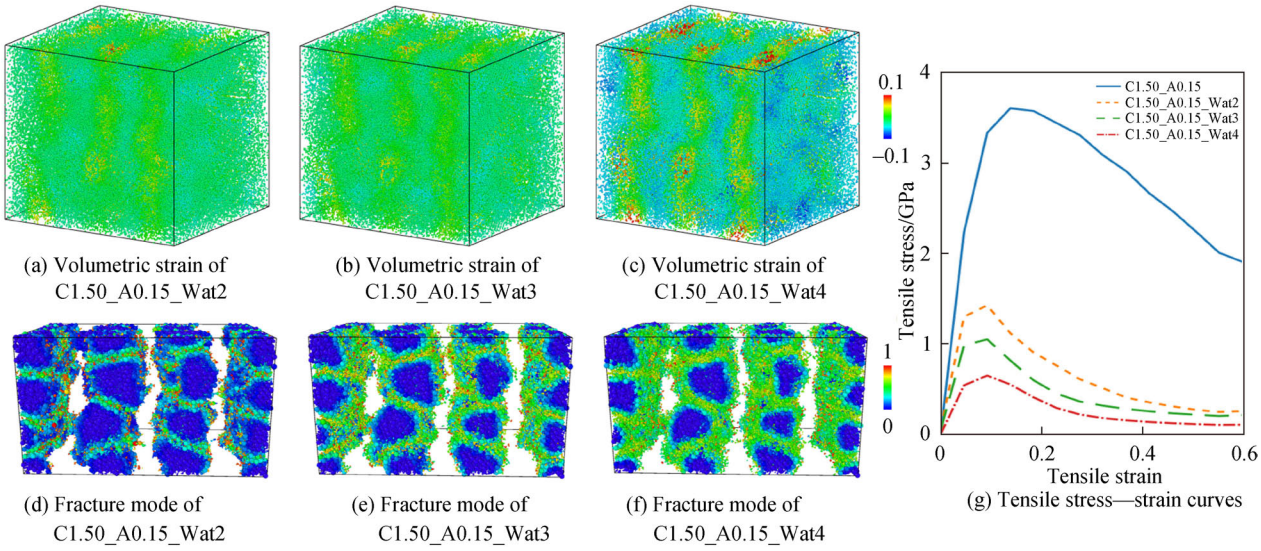


图 9 不同水状态下 CASH 的拉伸性能

Fig. 9 Tensile properties of CASH under different water states

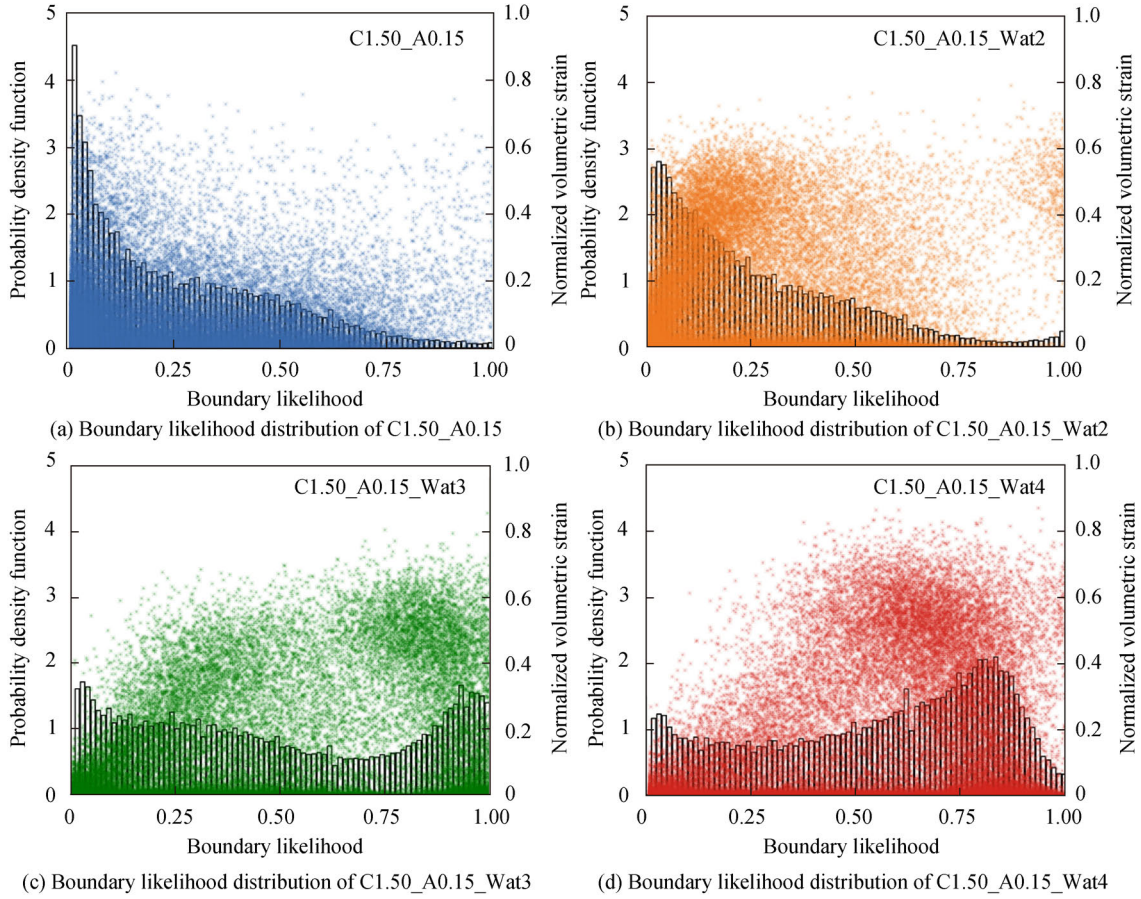


图 10 不同水状态下亚微米 CASH 的边界可能性直方图以及边界可能性与断裂时体积应变散点图

Fig. 10 Boundary likelihood histograms and boundary likelihood *vs*. volumetric strain scatter plots at fracture for CASH under different water

由图 10 可见，边界可能性值接近 0 表示原子更靠近晶粒内部，随着晶界区域水层厚度的增加，可以观察到边界可能性直方图由接近 0 逐渐转变为接近 1。在干燥状态下，CASH 的边界可能性直方图主要集中在接近 0 的位置；而在含水层模型中，具有较高边界可能性的原子往往伴随较大的体积应变，说明

水分子削弱了晶粒间的完整性。结合图 9 的拉伸性能分析可知，CASH 的内聚力依赖于颗粒间的直接接触：在干燥条件下，颗粒间紧密结合，展现出优异的力学性能；而颗粒间被水隔离时，内聚力显著减弱，力学性能降低。

2.6　模型的潜在应用

在这项工作中，开发了一种升尺度算法，突破了建立 CASH 亚微米结构的阻碍，弥合了实验与分子模拟之间的差距，有助于更真实地表征多晶颗粒体系、Ca/Si 与 Al/Si 耦合作用以及水的状态与含量，从而准确模拟 CASH 的物理与力学行为。真实水泥浆体是一个复合体系，其中，CASH 占总体积的 50%~70%，由约 5 nm 大小的分层纳米颗粒无序组装而成，结构参数存在固有的空间异质性。此外，还存在氢氧化钙(CH)、钙矾石(Aft)等其他水化产物，其与 CASH 之间产生相互作用。开发的亚微米模型不仅可用于揭示 CASH 的分子结构—力学性能关系，还为研究水泥多孔多相体系的物理、力学及传输特性提供了基础。

CASH 织构模型具有以下潜在应用：

1) 可耦合空间分布的 CASH 参数，如 Al/Si、Ca/Si、孔隙率、水含量及硅酸链长度，进一步探索铝的化学环境及配位状态对力学性能的影响；

2) 可构建多孔 CASH 模型，反映真实水泥浆体中高密度与低密度区域，从而研究孔隙结构及孔隙水演变对力学性能与徐变行为的影响；

3) 可扩展至多相 CASH 体系，建立包含 CASH、CH 和 Aft 的真实多相模型，研究含铝水泥体系中各产物之间的相互作用。

3　结论

本工作开发了一种跨尺度算法，突破了在亚微米建立 CASH 织构模型的阻碍，并通过分子动力学模拟揭示了多尺度结构演化、Ca/Si 与 Al/Si 耦合作用及多态水对 CASH 物理与力学性能的影响机理。主要结论如下：

1) 开发了一种将粗粒化模型重新映射为全原子模型的算法，建立了由单晶无序堆积组成的亚微米 CASH 织构模型，结构特征与 TEM 及 XRD 实验观测一致。单晶 CASH 力学性能具有显著方向依赖性，而亚微米无序堆积结构削弱了单晶的层间脆弱性，阐明了结构均质化是 CASH 由纳米尺度各向异性向亚微米尺度各向同性演化的关键机制。

2) Ca/Si 与 Al/Si 的耦合作用通过调控 Al—O、Ca—O 及 Si—O 键数量显著影响 CASH 力学性能。亚微米结构在 Ca/Si 为 1.50、Al/Si 为 0.10 时表现出最佳性能。随着 Al/Si 由 0.05 增加至 0.10，Al—O 键促进了硅链聚合，增强了层间作用，使抗拉性能提升 15.40%，但进一步增加 Al/Si 时，其对硅链连接度和整体骨架影响有限。相比之下，较高 Ca/Si 会减少桥联 Si—O 键数量，从而削弱结构的稳定性与力学性能。

3) 量化了 CASH 中的层间水、吸附水及自由水，发现了亚微米结构的内聚力依赖于颗粒间的直接接触。湿度作用下晶界区域的吸附水转变为自由水，显著削弱颗粒间内聚力，使强度降低超 40.80%，并伴随拉伸断裂模式由穿晶断裂转变为晶界断裂。

参考文献:

[1] 胡张莉, 刘加平, 赵羽习, 等. 数据驱动的混凝土材料–结构一体化设计研究进展[J]. 建筑结构学报, 2024, 45(8): 20–33.
HU Zhangli, LIU Jiaping, ZHAO Yuxi, et al. J Build Struct, 2024, 45(8): 20–33.

[2] 李粒珲, 王相权, 姚羿舟, 等. 基于背散射电子–X 射线能谱图像智能分析的胶凝材料微观多模态多视图表征[J]. 硅酸盐学报, 2025, 53(8): 2362–2373.
LI Lihui, WANG Xiangquan, YAO Yizhou, et al. J Chin Ceram Soc, 2025, 53(8): 2362–2373.

[3] 鲍玖文, 张心钰, 张鹏, 等. 干湿交替作用下碱激发混凝土氯盐侵蚀性能[J]. 硅酸盐学报, 2022, 50(6): 1607–1615.
BAO Jiuwen, ZHANG Xinyu, ZHANG Peng, et al. J Chin Ceram Soc, 2022, 50(6): 1607–1615.

[4] 谢宗霖, 钟福文, 向功坤, 等. 有机胶黏剂–水泥基材料界面黏附机理研究进展[J]. 硅酸盐学报, 2025, 53(5): 1389–1402.
XIE Zonglin, ZHONG Fuwen, XIANG Gongkun, et al. J Chin Ceram Soc, 2025, 53(5): 1389–1402.

[5] LU X K, ZHANG W X, RUGGIERO B N, et al. Scalable electrified cementitious materials production and recycling[J]. Energy Environ Sci, 2024, 17(24): 9566–9579.

[6] MONTEIRO P J M, MILLER S A, HORVATH A. Towards sustainable concrete[J]. Nat Mater, 2017, 16(7): 698–699.

[7] WANG J W, ZHU X H, WANG J, et al. Does the hydration process of supplementary cementitious materials affect the aging creep of blended cement paste?[J]. Cem Concr Res, 2025, 191: 107826.

[8] KNIGHT K A, CUNNINGHAM P R, MILLER S A. Optimizing supplementary cementitious material replacement to minimize the environmental impacts of concrete[J]. Cem Concr Compos, 2023, 139: 105049.

[9] LEAL R V P, ONGHERO L, OLIVEIRA M A R, et al. Assessing regenerated diatomaceous earth waste as a supplementary cementitious material[J]. Environ Technol Innov, 2025, 40: 104484.

[10] WANG J W, YANG R X, SANZ-CAMACHO P, et al. Aluminum incorporation lowers the intrinsic mechanical properties of single-chain calcium silicate hydrate[J]. Cem Concr Res, 2026, 199: 108026.

[11] 元强, 王玉曼, 张凯, 等. 盐雾湿润–干燥循环作用下水泥砂浆氯离子扩散特性[J]. 硅酸盐学报, 2023, 51(11): 2805–2813.
YUAN Qiang, WANG Yuman, ZHANG Kai, et al. J Chin Ceram Soc,

2023, 51(11): 2805–2813.
[12] L'HÔPITAL E, LOTHENBACH B, LE SAOUT G, et al. Incorporation of aluminium in calcium-silicate-hydrates[J]. Cem Concr Res, 2015, 75: 91–103.
[13] ZHU X H, RICHARDSON I G. Morphology-structural change of CASH gel in blended cements[J]. Cem Concr Res, 2023, 168: 107156.
[14] DUQUE-REDONDO E, BONNAUD P A, MANZANO H. A comprehensive review of C-S-H empirical and computational models, their applications, and practical aspects[J]. Cem Concr Res, 2022, 156: 106784.
[15] 於成龙, 元强, 周晓丰, 等.纳米 C-S-H 晶核对早高强喷射混凝土性能的影响及应用[J/OL].铁道科学与工程学报, 2025, 1–12.
YU Chenglong, YUAN Qiang, ZHOU Xiaofeng, et al. J Chin Ceram Soc, 2025, 1–12.
[16] MOHAMED A K, PARKER S C, BOWEN P, et al. An atomistic building block description of CSH-Towards a realistic CSH model[J]. Cem Concr Res, 2018, 107: 221–235.
[17] 赵丕琪, 孙乾, 杨新月, 等. 水化硅酸钙凝胶的研究进展[J]. 硅酸盐学报, 2024, 52(5): 1710–1721.
ZHAO Piqi, SUN Qian, YANG Xinyue, et al. J Chin Ceram Soc, 2024, 52(5): 1710–1721.
[18] PELLENQ R J, KUSHIMA A, SHAHSAVARI R, et al. A realistic molecular model of cement hydrates[J]. Proc Natl Acad Sci USA, 2009, 106(38): 16102–16107.
[19] ABDOLHOSSEINI QOMI M J, KRAKOWIAK K J, BAUCHY M, et al. Combinatorial molecular optimization of cement hydrates[J]. Nat Commun, 2014, 5: 4960.
[20] HOU D S, MA H Y, ZHU Y, et al. Calcium silicate hydrate from dry to saturated state: Structure, dynamics and mechanical properties[J]. Acta Mater, 2014, 67: 81–94.
[21] 乔岗, 王攀, 侯东帅, 等. 氧化石墨烯增韧水化硅铝酸钙的反应分子动力学模拟[J]. 硅酸盐学报, 2023, 51(5): 1154–1164.
QIAO Gang, WANG Pan, HOU Dongshuai, et al. J Chin Ceram Soc, 2023, 51(5): 1154–1164.
[22] LI G, TAO Y, GAO Y N, et al. Surface chemistry-mediated porewater fluctuations boost CO_2 docking in calcium silicate hydrates[J]. Nat Commun, 2025, 16(1): 7386.
[23] 刘加平, 汤金辉, 韩方玉. 现代混凝土增韧防裂原理及应用[J]. 土木工程学报, 2021, 54(10): 47–54.
LIU Jiaping, TANG Jinhui, HAN Fangyu. China Civ Eng J, 2021, 54(10): 47–54.
[24] TAO Y, MARTIN P, MANZANO H, et al. Mesoscopic mechanisms of dicalcium silicate dissolution[J]. Cem Concr Res, 2025, 189: 107660.
[25] DUQUE-REDONDO E, MASOERO E, MANZANO H. Nanoscale shear cohesion between cement hydrates: The role of water diffusivity under structural and electrostatic confinement[J]. Cem Concr Res, 2022, 154: 106716.
[26] CHEN X, PARK J, JI W Y, et al. Unlocking the interaction mechanism of CNTs and C-S-H on enhancing elastic and viscoelastic properties of alite paste[J]. Adv Sci, 2025, 12(38): e05876.
[27] 李凯, 赵雯, 史才军. 计算机模拟在水泥水化及微观结构演化研究的应用进展[J]. 硅酸盐学报, 2022, 50(2): 533–543.
LI Kai, ZHAO Wen, SHI Caijun. J Chin Ceram Soc, 2022, 50(2): 533–543.
[28] KUNHI MOHAMED A, MOUTZOURI P, BERRUYER P, et al. The atomic-level structure of cementitious calcium aluminate silicate hydrate[J]. J Am Chem Soc, 2020, 142(25): 11060–11071.
[29] WEI S H, ZHENG K R, CHEN W, et al. The correlation between Al incorporation and alkali fixation by calcium aluminosilicate hydrate: Observations from hydrated C_3S blended with and without metakaolin[J]. Cem Concr Res, 2023, 172: 107249.
[30] LI J Q, ZHANG W X, SANZ-CAMACHO P, et al. The nanomechanical properties of non-crosslinked calcium aluminosilicate hydrate: The influences of tetrahedral Al and curing age[J]. Cem Concr Res, 2022, 159: 106900.
[31] ZHENG Q, JIANG J Y, YU J, et al. Aluminum-induced interfacial strengthening in calcium silicate hydrates: Structure, bonding, and mechanical properties[J]. ACS Sustainable Chem Eng, 2020, 8(7): 2622–2631.
[32] HOU D S, ZHENG H P, DUAN Y Y, et al. Understanding the wetting discrepancy in calcium alumino silicate hydrate induced by Al/Si ratio[J]. Phys Chem Chem Phys, 2022, 24(11): 6973–6987.
[33] LI Y J, CHEN C, LI Z N, et al. High-throughput atomistic modeling of nanocrystalline structure and mechanics of calcium aluminate silicate hydrate[J]. Nat Commun, 2025, 16(1): 5352.
[34] HOU D S, WU C, YANG Q R, et al. Insights on the molecular structure evolution for tricalcium silicate and slag composite: From ^{29}Si and 27Al NMR to molecular dynamics[J]. Compos Part B Eng, 2020, 202: 108401.
[35] YANG J, HOU D S, DING Q J. Structure, dynamics, and mechanical properties of cross-linked calcium aluminosilicate hydrate: A molecular dynamics study[J]. ACS Sustainable Chem Eng, 2018, 6(7): 9403–9417.
[36] YIP S, SHORT M P. Multiscale materials modelling at the mesoscale[J]. Nat Mater, 2013, 12(9): 774–777.
[37] JENNINGS H M. Refinements to colloid model of C-S-H in cement: CM-II[J]. Cem Concr Res, 2008, 38(3): 275–289.
[38] FISH J, WAGNER G J, KETEN S. Mesoscopic and multiscale modelling in materials[J]. Nat Mater, 2021, 20(6): 774–786.
[39] ZHANG Y, LIU Q Y, WANG L G, et al. Multiscale mechanical behavior of calcium silicate hydrates: Insights from experiments and coarse-grained computation[J]. ACS Appl Mater Interfaces, 2025, 17(22): 32752–32763.
[40] HEO L, FEIG M. One bead per residue can describe all-atom protein structures[J]. Structure, 2024, 32(1): 97–111.e6.
[41] CHRISTOFI E, BAČOVÁ P, HARMANDARIS V A. Physics-informed deep learning approach for reintroducing atomic detail in coarse-grained configurations of multiple poly(lactic acid) stereoisomers[J]. J Chem Inf Model, 2024, 64(6): 1853–1867.
[42] WANG J W, HU Z L, CHEN Y, et al. Effect of Ca/Si and Al/Si on micromechanical properties of C(-A)-S-H[J]. Cem Concr Res, 2022, 157: 106811.
[43] WANG T, ZHENG Y Q, QIAN H, et al. Effects of Al in C–A–S–H gel on the chloride binding capacity of blended cement paste[J]. Cem Concr Res, 2025, 190: 107805.
[44] ZHANG Z, GENG G Q. Measuring the surface cohesion of calcium silicate hydrate[J]. Cem Concr Res, 2024, 175: 107369.
[45] ALLEN A J, THOMAS J J, JENNINGS H M. Composition and density of nanoscale calcium-silicate-hydrate in cement[J]. Nat Mater, 2007, 6(4): 311–316.
[46] GENG G Q, VASIN R N, LI J Q, et al. Preferred orientation of calcium aluminosilicate hydrate induced by confined compression[J]. Cem Concr Res, 2018, 113: 186–196.
[47] EMMINGER Y H, LADNER L, RUIZ-AGUDO C. Comparative study

of the early stages of crystallization of calcium silicate hydrate (C-S-H) and calcium aluminate silicate hydrate (C-A-S-H)[J]. Cem Concr Res, 2025, 193: 107873.

[48] YAN Y, GENG G Q. Does nano basic building-block of C-S-H exist?–A review of direct morphological observations[J]. Mater Des, 2024, 238: 112699.

[49] YU Z C, ZHUO J B, QIN R Y, et al. Coarse-grained molecular dynamics study on submicron structuring of calcium silicate hydrate with enhanced tensile modulus and strength[J]. J Build Eng, 2024, 82: 108271.

[50] AURENHAMMER F. Voronoi diagrams: A survey of a fundamental geometric data structure[J]. ACM Comput Surv, 1991, 23(3): 345–405.

[51] LIU L C, JARAMILLO-BOTERO A, GODDARD W A 3rd, et al. Development of a ReaxFF reactive force field for ettringite and study of its mechanical failure modes from reactive dynamics simulations[J]. J Phys Chem A, 2012, 116(15): 3918–3925.

[52] ZHOU H, LIU B, LU D Y, et al. Preparation and properties of calcium aluminum silicate hydrate–polycarboxylate nanocomposites (CASH–PCE)[J]. J Sustain Cem Based Mater, 2024, 13(4): 558–576.

[53] KAPELUSZNA E, KOTWICA Ł, RÓŻYCKA A, et al. Incorporation of Al in C-A-S-H gels with various Ca/Si and Al/Si ratio: Microstructural and structural characteristics with DTA/TG, XRD, FTIR and TEM analysis[J]. Constr Build Mater, 2017, 155: 643–653.

[54] ZHU X P, VANDAMME M, BROCHARD L, et al. Nature of aluminates in C-A-S-H: A cryogenic stability insight, an extension of DNA-code rule, and a general structural-chemical formula[J]. Cem Concr Res, 2023, 167: 107131.

[55] JIN M, MA Y F, LI W W, et al. Multi-scale investigation on composition-structure of C-(A)-S-H with different Al/Si ratios under attack of decalcification action[J]. Cem Concr Res, 2023, 172: 107251.

[56] TANG L W, LIU H, MA G, et al. The energy landscape governs ductility in disordered materials[J]. Mater Horiz, 2021, 8(4): 1242–1252.

[57] LI J Q, ZHANG W X, GARBEV K, et al. Influences of cross-linking and Al incorporation on the intrinsic mechanical properties of tobermorite[J]. Cem Concr Res, 2020, 136: 106170.

[58] BARZGAR S, TARIK M, LUDWIG C, et al. The effect of equilibration time on Al uptake in C-S-H[J]. Cem Concr Res, 2021, 144: 106438.

[59] BONNAUD P A, JI Q, VAN VLIET K J. Effects of elevated temperature on the structure and properties of calcium–silicate–hydrate gels: The role of confined water[J]. Soft Matter, 2013, 9(28): 6418–6429.

[60] HONORIO T, MASARA F, POYET S, et al. Surface water in C-S-H: Effect of the temperature on (de)sorption[J]. Cem Concr Res, 2023, 169: 107179.

[61] LIANG C Y, ZHENG Q, JIANG J Y, et al. Calcium silicate hydrate colloid at different humidities: Microstructure, deformation mechanism, and mechanical properties[J]. Acta Mater, 2022, 228: 117740.

Textural Modeling and Multiscale Mechanical Evolution Mechanisms of Calcium Aluminate Silicate Hydrate

ZHOU Ao[1], *ZHUO Jingbo*[1], *YU Zechuan*[2], *WANG Zhenyu*[2], *LIU Tiejun*[1]

(1. Guangdong Provincial Key Laboratory of Intelligent and Resilient Structures for Civil Engineering, Harbin Institute of Technology, Shenzhen 518055, Guangdong, China 2. School of Civil Engineering and Architecture, Wuhan University of Technology, Wuhan 430070, HUbei, China)

Extended Abstract

Introduction Calcium aluminate silicate hydrate (CASH) is a principal binding phase in Al-doped cement systems, with the upper limits of macroscopic cementitious performance ultimately determined by its intrinsic nanoscale mechanical properties. Understanding the multiscale structure-property relationships is essential for guiding the design of improved CASH performance.The unclear submicron structure of CASH as a critical bridge between nanoscale behavior and macroscopic properties hinders the understanding of the evolution of multiscale mechanical properties. This study was to develop a CASH texture model from single crystals to polycrystals and to reveal the impacts of coupled Ca/Si and Al/Si ratios and water states on its physical and mechanical properties.

Methods An upscaling algorithm was developed to remap coarse-grained models to all-atom models, overcoming barriers in constructing submicron textural structures, bridging experimental observations and molecular simulations, and providing some insights into CASH. This approach could enable the exploration of emergent cement phenomena in scales up to 100 nanometers with millions of atoms, offering a realistic representation of CASH pore structure, packing density, water content and state, as well as surface roughness. The resulting submicron-sized CASH was composed of randomly packed nanostructural units, reproducing structural features that were consistent with experimental observations. Molecular dynamics simulations were employed to reveal the multiscale structural evolution, the coupled effects of Ca/Si ratio and Al/Si ratio as well as the influence of multiple water states on the physical and mechanical properties of CASH.

Results and discussion The results indicate that a structural homogenization serves as a fundamental mechanism driving the transition of CASH from nanoscale anisotropy to submicron isotropy, with a disordered packing mitigating the interlayer fragility of single crystal CASH. When the Al/Si ratio increases from 0.05 to 0.10, Al–O bonds facilitate silicate chain polymerization, resulting in an enhancement of 15.40% in tensile strength. The submicron-sized CASH structure achieves an optimal mechanical performance

at a Ca/Si ratio of 1.50 and an Al/Si ratio of 0.10. Further increasing the Ca/Si ratio leads to a reduction in strength due to a decrease in bridging Si–O bonds, whereas increasing the Al/Si ratio exerts an limited influence on the chain connectivity and framework stability. The cohesion of CASH is governed by intergranular contacts, and adsorbed water in the grain boundary regions is released as free water under humid conditions, significantly weakening cohesion and reducing strength by 40.80%.

Conclusions In this study, an upscaling algorithm was developed to overcome barriers in constructing CASH textural models. Molecular dynamics simulations were employed to elucidate the multiscale structural evolution, Ca/Si and Al/Si coupling, and water governing the physical and mechanical properties of CASH. The findings could advance the atomic scale understanding of the submicron polycrystalline structure and mechanical behavior of CASH, paving a way for the design of more sustainable and durable cementitious composites.

Keywords calcium aluminate silicate hydrate; textural modeling; multiscale; mechanical properties; molecular dynamics