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.0454-5648.20250730

基于干燥处理调控的水泥基材料碳化梯度形成机制

洪舒贤，余欣禧，周隆炎，江侨侨，彭 毅，王 煦，范圣新，董必钦

(深圳大学土木与交通工程学院，广东省滨海土木工程耐久性重点实验室，深圳市低碳建筑材料与技术重点实验室，广东 深圳 518000)

摘 要：利用二氧化碳养护水泥基材料可以提高其密实性及力学性能，是制备绿色低碳建筑材料的可行方案，需要形成有效的性能调控方法。然而，由于表征技术的缺乏，目前仍然缺乏有效调控孔隙含水空间分布及碳化梯度的方法，进而未能有效实现性能调控。因此，本工作利用 X 射线成像技术追踪监测水泥基材料失水前后密度变化和碳化前后衰减系数变化，并结合酚酞、热重和低场核磁的测试结果进行对比验证，最后揭示了预干燥时间对失水梯度和碳化梯度的影响机制，及其对早期强度的调控机制。结果表明，较短干燥周期样品总失水量少且失水梯度平缓(表面与内部失水均匀)，此时表面的高残余含水量有利于原位碳化反应，但限制了 CO_2 向内部的传输，进而形成较高的表面碳化程度及较浅的碳化深度，即陡峭的碳化梯度。而长干燥周期样品总失水量大且失水梯度陡峭(表面失水量增大)，表面的低残余含水量有利于 CO_2 扩散，但会抑制钙离子溶解，最终表面碳化程度相对较低但碳化深度增大，即形成平缓的碳化梯度。陡峭的失水梯度驱动 CO_2 向内部扩散，提升整体碳化反应程度，可显著降低总孔隙率，孔隙率的降低提升了材料抗压强度。

关键词：碳化养护；X 射线成像；无损检测；失水梯度；碳化梯度
中图分类号：TU528　　**文献标志码**：A　　**文章编号**：0454–5648(2026)03–0993–13
网络出版时间：2026–02–10

全球气候变暖已成为人类面临的重大问题，二氧化碳导致的温室效应被普遍认为是导致这一全球性环境问题的重要原因。早期碳化养护混凝土技术作为一种新型的二氧化碳利用技术[1, 2]，既能实现二氧化碳的资源化利用，有望成为实现中国“碳中和与碳达峰”目标的关键技术，又能获得具有高附加值的水泥基材料。因此，早期碳化养护混凝土技术对混凝土行业的可持续发展和减少全球碳排放具有重要的意义。

提高碳化反应活性有助于推广早期碳化养护混凝土技术。其中，已有研究表明孔隙含水量对反应活性和二氧化碳扩散性具有较大影响，进而对碳化程度和混凝土力学性能有较大影响[3–8]。一方面，当水分含量较低时，碳化反应程度会受到极大限制。Galan 等[9–11]研究认为，过低的湿度或者碳化前过度干燥预处理会导致碳化效率降低，这是因为表面难以形成足够厚且连续的水膜，CO_2 和含钙固态的溶解速率受限，因此，认为低湿度状态下试样碳化反应受限；另一方面，虽然碳化养护需要水分的参与，但是过量的水分同样会抑制碳化反应，二氧化碳在水中的扩散率是在大气中的扩散率的万分之一[12]，因此，过高的孔隙水分含量会抑制二氧化碳的传输，进而影响碳化深度和反应速率，导致碳化深度持续下降[13]。基于现有研究发现，水泥基材料的碳化程度随湿度变化呈现先升高后降低的趋势，最佳湿度范围通常介于 40%~60%之间[14–15]。

虽然现有研究证实了孔隙含水量对碳化有较大影响，但是目前的研究中失水量的评价主要是通过样品整体失水量进行评价，例如，利用样品称重法或者水分收集称重来评价样品的整体失水量[16–17]。值得注意的是，基于水泥基材料的复杂孔隙结构与非均质性特征，不同深度的孔隙含水量存在较大差异，因而不同深度的碳化反应效率也存在差异，形成了含水量梯度与碳化程度的梯度特征。然而，目

收稿日期：2025–09–30。　修订日期：2025–11–06。
基金项目：国家自然科学基金(52308269，U24A20166，52408280)。
第一作者：洪舒贤(1982　)，女，博士，教授。
通信作者：范圣新(1990　)，男，博士，助理教授。

Received date: 2025–09–30.　**Revised date:** 2025–11–06.
First author: HONG Shuxian (1982–), female, Ph.D., Professor.
E-mail: sxhong@szu.edu.cn
Correspondent author: FAN Shengxin (1990–), male, Ph.D., Assistant Professor.
E-mail: sxfan@szu.edu.cn

前已有的研究缺少失水梯度形成机制以及失水梯度对碳化的影响机制研究，进而影响了碳化梯度调控方法的形成。因此，应系统地分析失水梯度对碳化反应机制和孔隙结构特征的影响规律，以揭示其对碳化梯度的调控机制，并探明碳化梯度与性能之间的相关关系。

现有研究的主要测试手段无法持续追踪混凝土内部的水分空间分布变化，也无法直观显示碳化产物的空间分布，因而难以精确表征失水梯度与碳化梯度。研究中常用的混凝土碳化深度与程度测试方法包括酚酞指示剂、热重、红外技术等，这些方法可适用于不同场景，同时也都存在一定的局限性，例如，酚酞指示剂测量碳化存在误差较大、无法界定完全碳化和部分碳化区域等问题，因而无法定量分析碳化梯度特征；X 射线衍射、热重、红外等手段都需要对样品进行破坏，因而无法持续追踪碳化过程。同时，以上方法也无法直观显示碳化产物的空间分布，因此，难以精确表征碳化梯度。为了更全面地分析碳化梯度特征及形成机理，一个更精确的、更快速的碳化测试方法是不可或缺的。

Hong 等[18]利用 X 射线成像技术对硬化水泥基材料碳化过程进行了二维可视化成像，并利用密度增量实现了水泥基材料碳化深度和碳化密度增量的定量表征，该方法也可以应用到早期碳化中。然而，水泥基材料早期碳化养护期间的密度变化起因更为复杂：CO_2 的吸收会导致射线穿透样品后灰度值减小，放热失水会导致射线穿透样品后灰度值增大，二者的耦合作用使得难以直接从样品的灰度图像上实现碳化梯度的表征。现有的碳化表征方法无法同时处理碳化信号和水分信号，因此，需要相应的信号分离方法的建立才能准确表征碳化引起的信号变化过程。

本工作利用X射线成像技术无损定量地追踪不同预干燥时间作用下早期碳化养护水泥基材料失水梯度与早期碳化梯度形成规律，并通过热重分析和低场核磁测试表征碳化前后水泥基材料的物相和孔隙结构变化规律，揭示了 5 种不同预干燥时间作用下失水梯度与碳化梯度形成机制，最后，通过单轴抗压测试表征碳化水泥基材料强度变化规律，并探明了强度调控机制。

1 材料与试验

1.1 材料和预处理

制备试样所需原材料有：水和 P.O. 42.5 水泥，其中水泥的化学组分如表 1 所示。

表 1 P.O. 42.5 水泥的化学组分

Table 1 Chemical composition of P.O. 42.5 cement

w/%

Composition	SiO_2	Al_2O_3	Fe_2O_3	CaO	SO_3	MgO	K_2O
Cement	18.40	4.93	3.99	65.43	2.95	2.31	0.75

Notes: *w* is mass fraction.

研究中试件的水胶比为 0.4，其制作和养护遵循《混凝土物理力学性能试验方法标准》(GB/T 50081—2019)[19]，其中，抗压强度测试样品的尺寸为 40 mm×40 mm×40 mm，X 射线成像测试样品的尺寸为 10 mm×20 mm×40 mm。X 射线测试样品制备流程如图 1 所示：样品浇筑后在标准养护环境中放置 18 h 后脱模，其后用环氧树脂封涂样品的 5 个面，只留下 1 个 10 mm×20 mm 表面暴露在空气中，确保水分和 CO_2 只在单方向上进行扩散传输。在获取样品脱模封面后的初始状态成像结果后，将样品置于 40 ℃、相对湿度 70%环境中分别干燥处理 0、1.5、3、6 h 和 24 h 后，再将样品置于 20 ℃、相对湿度 70%、CO_2 含量 20%的环境中碳化 24 h。为了与未碳化样品进行对比，同时设置了 1 组不碳化的水泥净浆样品(NC)作为空白对照组。样品编号采用“CC+预养护龄期–干燥预处理时长”的命名方式。

1.2 X 射线成像试验

为了快速追踪样品在失水和加速碳化期间的变化，采用 X 射线成像技术在失水前后和碳化前后对样品的 20 mm×40 mm 面进行投影成像。本研究中采用的 X 射线成像设备为 Xradia Micro XCT-400，选择射线成像模式。为了提高样品密度与衰减系数之间的线性关系，需要添加滤镜，对 X 射线管发射出的低能量 X 射线进行过滤。具体实验参数如下：X 射线激发电压 150 kV，功率 8 W，曝光时间 14 s，滤镜型号为 HE6。成像后得到像素为 1024×1024 的二维图像，每个像素代表的实物面积为 0.044 mm×0.044 mm。

失水分布图像处理包括场非均匀性校正、场能量归一化、图像配准、灰度差值计算和失水分布表征；而碳化分布图像处理包括场非均匀性校正、场能量归一化、图像配准、衰减系数差值计算、碳化–水信息分离和早期碳化分布量化。基本步骤如下[18]。1)足跟效应修正：添加型号为 HE6 的滤镜，优化了 X 射线的单色性，因此，需求出该滤镜作用下 X 射线的足跟效应修正矩阵，用于修正后续成像结果中

足跟效应所带来的误差。对于不同碳化龄期的 X 射线成像，都需要重新计算修正矩阵；2)图像配准：采用二值化预处理的方式，提高样品边缘与无样品处的灰度衬度，以二值化后的图像作为多模态空间配准的依据，并输出图像配准矩阵，最终将图像配准矩阵作用至对应的原投影图像中；3)灰度差矩阵：将每次足跟效应修正后的灰度分布，与 0 h 的灰度结果进行作差处理，获取碳化前后成像结果对应位置的灰度变化；4)失水分布：通过对比失水前后的样品灰度矩阵变化确定样品的剖面灰度差值分布，将灰度增量曲线的包络面积与样品的失水量进行标定，进而将样品灰度剖面曲线转变为失水剖面曲线[20]。通过式(1)可以计算失水标定系数：

$$\alpha_{\mathrm{w}}=\frac{m_{\mathrm{w}}}{A} \tag{1}$$

式中：α_{w}为失水标定系数；m_{w}为样品的失水质量(g)；A为灰度差值剖面曲线与 X 轴的包络面积；5)衰减系数变化量：基于 X 射线成像原理可知，在 X 射线成像结果中，图像的灰度与 X 射线探测器接收的光强度呈线性关系，结合比尔-朗博定律，可以得到样品上各点处 X 射线衰减系数的变化量，具体转换方法如参考文献[18]所示；6)碳化分布：利用 X 射线成像技术追踪监测水泥浆体早期碳化养护过程时，一方面 CO_2 的吸收会导致射线穿透样品后灰度值减小；另一方面，放热失水会导致射线穿透样品后灰度值增大，二者的耦合作用使得难以直接从样品的灰度图像上实现碳化表征。因此，要将碳化过程中水分损失导致的信号分离。考虑到本工作采用的水泥浆体且样品的均匀性较好，可以近似认为水泥浆体在拆模后的水分分布均匀。因此，本工作提出以未碳化区完全干燥失水引起的衰减系数变化为基础消除碳化区水分引起的信号变化，同时需考虑环氧树脂衰减系数的影响。通过式(2)可以计算出仅由碳化反应引起的衰减系数变化：

$$\Delta\mu_{\mathrm{c}}=\Delta\mu-\Delta\mu_{\mathrm{w-pre}}-\Delta\mu_{\mathrm{w-drying}}-\Delta\mu_{\mathrm{ER}} \tag{2}$$

式中：$\Delta\mu_{\mathrm{c}}$为仅由碳化反应引起的衰减系数变化；$\Delta\mu$为水泥浆体在实验过程中的衰减系数总变化；$\Delta\mu_{\mathrm{w-pre}}$为预处理时由失水引起的衰减系数变化；$\Delta\mu_{\mathrm{w-drying}}$为彻底干燥引起的衰减系数变化；$\Delta\mu_{\mathrm{ER}}$为环氧树脂拆除引起的衰减系数变化。

1.3　酚酞指示剂测试

为了验证 X 射线成像确定的样品碳化深度，在第 3 d 时按照规范[21]的要求，将样品沿长度方向劈开，并使用酚酞酒精溶液对其中 1 个劈开面进行喷洒，基于孔隙溶液 pH 值变化导致酚酞变色的特征进行碳化深度测量。

1.4　热重分析

为了解释不同的失水梯度对样品碳化行为的影响机理，对被碳化样品进行了热重分析，确定样品碳化区氢氧化钙($Ca(OH)_2$)含量和碳酸钙($CaCO_3$)含量。本工作中采用的热重分析设备为 Netzsch 的 STA 449 F5 Jupiter®。热重分析过程遵循规范 ASTM C1872-18[22]。取样时根据 X 射线成像结果，对样品取高碳化区、部分碳化区和未碳化区，进行切割、取样与研磨。

1.5　低场核磁测试

为了探究不同失水梯度作用下早期碳化样品孔隙率的变化，解析失水梯度和碳化梯度的形成机制，利用低场核磁技术测试样品的孔隙率。具体处理步骤如下：在棱柱形样品碳化养护结束后拆除其环氧树脂，将其放入真空饱和仪中用去离子水进行真空饱水 2 d，确保样品内部孔隙中可以充分饱水。随后，将样品取出并用湿纸巾拭去样品表面的多余水分，后将样品置于聚四氟乙烯制成的圆柱形管中，进行低场核磁测试，表征样品的孔隙率和孔径分布。低场核磁测试参数为：测试采用 Carr-Purcell-Meiboom-Gill (CPMG)序列，CPMG 测试参数设置如表 2 所示，结果分析方法可参考文献[23]。

1.6　抗压强度测试

为了进一步研究碳化梯度对抗压强度的影响，利用极限荷载为 5 t 的万能试验机测试样品抗压强度。抗压强度测试参照标准(GB/T 17671—2021)《水泥胶砂强度检验方法(ISO 法)》[24]。针对 40 mm × 40 mm × 40 mm 的碳化/未碳化水泥试件进行抗压强度测试，加载速率为 0.6 MPa/min。每 3 个试件为 1 组，取其平均值作为试件的 3 d 抗压强度值。

2　结果与讨论

2.1　失水分布图

将样品失水后的 X 射线成像图灰度分布与失水前的成像图灰度分布进行作差，计算失水前后对应位置处的灰度值变化，同时将灰度差值图的包络面积与样品的失水量进行关联，进而将样品灰度平面分布图转变为失水量平面分布图[20]。

图 2 为失水的空间分布可视化结果。由图 2 可见，区域颜色越暗表明该位置处的失水量越大，也可通过图像直观地展示失水峰位置，可见所有样品在

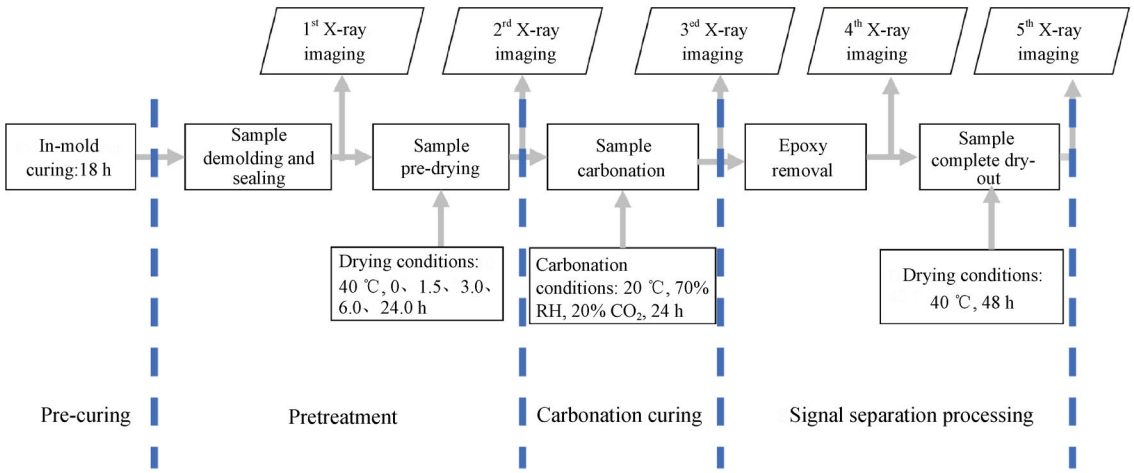


图 1 样品制备与测试流程

Fig. 1 Sample preparation and testing procedure

表 2 CPMG 序列参数设置

Table 2 CPMG sequence parameter configuration

Parameter	S_F/MHz	S_w/kHz	P_1/μs	P_2/μs	T_w/ms	T_E/ms	NECH	Ns
Value	12	200	7.2	11.04	1500	0.1	2000	16

Note: S_F is spectrometer frequency, S_w is sampling bandwidth, P_1 is 90° pulse width, P_2 is 180° pulse width, T_w is wait time, T_E is echo time, NECH is number of echoes, and N_S is number of scans.

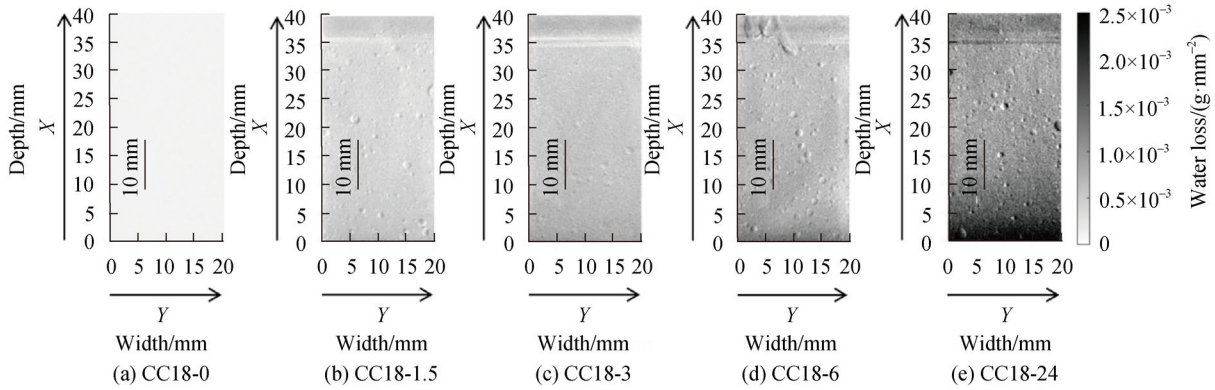


图 2 失水的空间分布可视化结果

Fig. 2 Visualization of spatial distribution of moisture loss

暴露表面附近区域的水分损失都比样品内部更大。此外，不同的干燥预处理时长会导致明显的失水空间分布差异。其中，由于 CC18-0 组(图 2a)没有进行干燥处理，可以看出该系列的样品平面空间中未出现失水。CC18-1.5 组样品(图 2b)平面同样没有显著的灰度差异且整体亮度较低，表明干燥时间较短导致样品整体失水量小且内部失水均匀。而图 2c~图 2d 显示，随着干燥时间增长，样品整体明显变暗，这表明样品整体失水量明显增大；同时，样品表面亮度变化也明显大于内部，说明表面失水量增长速度明显大于样品内部失水量的增长速度。

此外，将同一深度各位置的失水量进行叠加，可以得到沿深度的失水量分布曲线(图 3)，更直观地表现不同深度的失水量变化。该曲线的包络面积代表了样品的整体失水量。不同样品的沿深度失水量分布曲线都呈现失水质量随深度增大而出现从大到小的变化。由图 3 可见，干燥 1.5 h 样品的失水曲线并未出现陡峭段，该组样品表面与样品内部失水量差异不明显，即内外失水量差异小于 0.01 g/mm，可以视为存在均匀失水的情况，验证了图 2a 的发现。而同样地，图 3 表明样品整体失水量会随着干燥时间的延长而大幅增加，而且表面失水量与内部失水量存在较大差异，形成明显的失水梯度，且失水量峰值和失水梯度随着干燥时间延长而增大。其中，

干燥 6 h 的样品(CC18-6)开始出现明显的失水梯度，而 CC18-24 组样品表面失水更为剧烈。

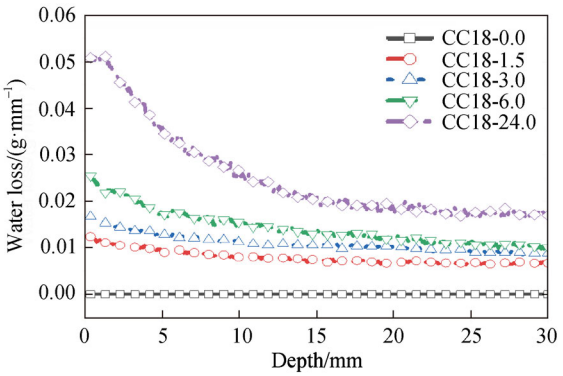


图 3　沿深度失水量分布曲线

Fig. 3　Moisture loss distribution profile along depth

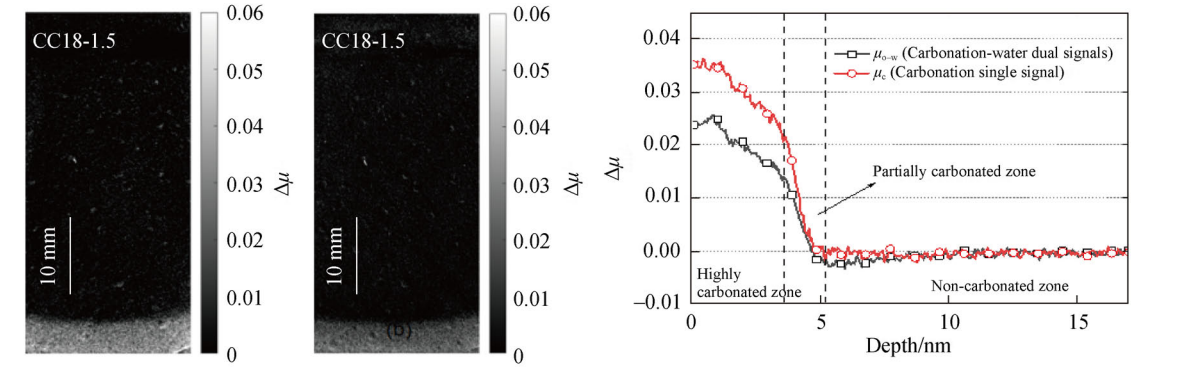
2.2　碳化增量图

为了对比碳化期间水分迁移对投影结果的影响，可按式(3)计算碳化期间碳化和水耦合作用下的衰减系数二维分布及其对应的沿深度衰减系数变化曲线：

$$\Delta\mu_{c-w} = \Delta\mu_3 - \Delta\mu_2 \tag{3}$$

式中：$\Delta\mu_{c-w}$ 为碳化养护期间碳化反应和水迁移耦合作用下样品的衰减系数变化；$\Delta\mu_i$ 为样品在第 i 次 X 射线成像投影与初始投影之间的衰减系数变化。

碳化样品 CC18-1.5 在碳化养护期间的衰减系数分布如图 4 所示，其中，图 4a 为碳化–水双信号($\Delta\mu_{c-w}$)的二维分布，反映的是碳化和水分共同作用下的衰减系数变化，图 4b 为仅碳化引起的单信号($\Delta\mu_c$)的二维分布，反映的是碳化作用下的衰减系数变化(即早期碳化分布)。图 4c 为 $\Delta\mu_{c-w}$ 和 $\Delta\mu_c$ 2 种衰减系数随深度变化的曲线。从图 4c 中可以看出，在进行信号分离后，$\Delta\mu_c$ 峰值要大于 $\Delta\mu_{c-w}$ 的，这是因为 $\Delta\mu_{c-w}$ 是水和碳化共同作用下的衰减系数变化，而水泥浆体的早期碳化反应是一个放热反应，CO_2 结合反应生成碳酸钙的反应热会导致样品表层的水分逸散至外部环境中。该结果说明了仅采用 X 射线成像技术无法实现早期碳化分布的量化表征，需要借助碳化－水双信号分离方法才能去除水分在此过程中的影响。



(a) Spatial distribution of carbonation-water dual signals ($\Delta\mu_{c-w}$)

(b) Spatial distribution of cabonation single signal ($\Delta\mu_c$)

(c) Depth profile of attenuation coefficient variation for the sample

图 4　样品碳化养护期间衰减系数变化的可视化和沿深度衰减系数变化曲线

Fig. 4　Visualization and profile curves of attenuation coefficient variation during sample carbonation curing

样品仅由碳化引起的衰减系数变化 $\Delta\mu_c$ 二维分布如图 5 所示，沿深度衰减系数变化曲线如图 6 所示。其中，图 6 反映了平均衰减系数变化值($\Delta\mu$)与深度的相关关系，$\Delta\mu_c$ 是仅由碳化反应作用引起的衰减系数变化结果，$\Delta\mu_c$ 值为 0 代表该位置在碳化养护期间衰减系数没有变化，即该位置没有发生碳化反应。在图 5 中，亮度越高表明该位置处的碳化程度越高。

由图 5 还可以看出，随着失水时间的增长，样品明亮区域的总面积逐渐增大，同时靠近暴露面区域的亮度有所减小，前者表明样品的碳化深度随着失水时间的增长而增大，后者则说明该区域的碳化程度有所降低。即使在无干燥处理时，CC18-0 组表明也会出现明显碳化情况，此时，碳化深度低于 5 mm，而干燥 24 h 的样品碳化深度有明显的增大。

不同干燥处理制度的样品沿深度衰减系数变化曲线形状基本相同，如图 6 所示。第 1 段是稳定段，该区域的衰减系数变化稳定且较大，表明样品暴露面附近区域发生了较为充分的碳化，为高碳化区域；第 2 段是下降段，该区域衰减系数变化随着深度的

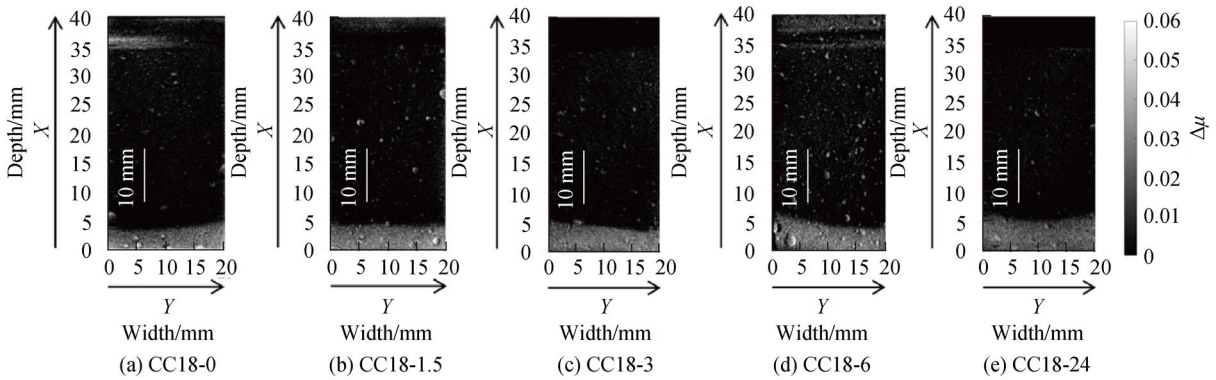


图 5 各样品碳化后总衰减系数平面变化图

Fig. 5 Mapping of attenuation coefficient variations for various samples after carbonation

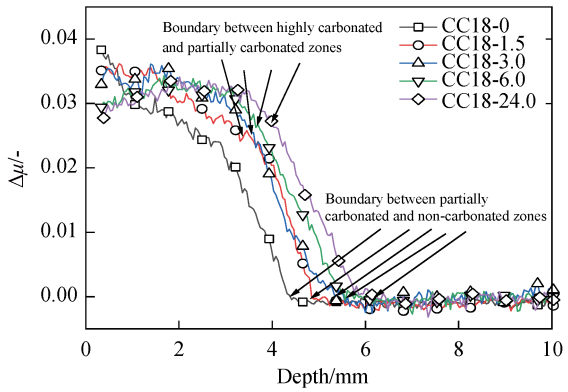


图 6 各样品碳化后沿深度衰减系数变化曲线

Fig. 6 Depth profiles of attenuation coefficient variation for various samples after carbonation

增加而逐渐减小，这主要是因为该区域较高的湿度限制了 CO_2 向样品内部的进一步传输，进而限制了碳化反应的发生，因此该区域定义为部分碳化区域，该区域长度较短，碳化程度的快速下降表明了该区域只在小范围内发生碳化；第 3 段为未碳化区域，该区域的衰减系数变化稳定且在 0 左右小幅波动，表明碳化前后衰减系数变化微乎不计，属于非碳化段。进一步通过沿深度衰减系数变化曲线图量化各样品碳化程度与深度的区别(图 6)，在图 6 中，曲线的最大值可以量化为样品的最大碳化程度，而将曲线中的衰减系数变化值在到达 0 后趋于相对稳定的深度定义为该样品的最大碳化深度。部分碳化区末端及未碳化区的衰减系数变化出现小于 0 的情况主要是由完全干燥过程中未碳化区的 2 次碳化引起的。如式(2)所示，本工作中采用了以未碳化区完全干燥失水引起的衰减系数变化为基础消除碳化区水分引起的信号变化的方法，而未碳化区 2 次碳化引起的衰减系数变化虽然较小，但无法完全排除，且未碳化区的 2 次碳化高于碳化区的二次碳化程度，因此，二者相减后呈现部分碳化区及未碳化区衰减系数变化值小于 0 的现象。

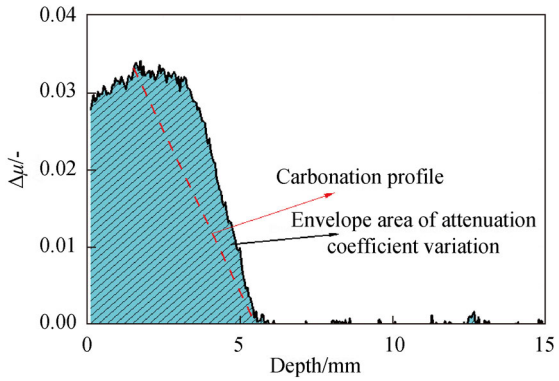


图 7 样品碳化梯度与衰减系数总变化量示意图

Fig. 7 Schematic diagram of carbonation profile versus total variation of attenuation coefficient in samples

在所有预处理制度中，CC18-0 的碳化深度最浅(4.3 mm)，而最大碳化程度($\Delta\mu_c$ = 0.038)出现在表面。CC18-1.5/3/6 3 组样品的碳化深度随着干燥时间的延长有较为轻微的增加，但部分碳化区的下降速率基本一致。最后，CC18-24 样品的碳化深度最大，约为 6.6 mm，同时，峰值碳化程度($\Delta\mu_c$ = 0.028)是最低的。

与其他 3 组相比，CC18-0 组和 CC18-1.5 组样品的最大碳化程度均出现在表面，CC18-0 组并未出现明显的高碳化区，而随着干燥时间的延长，最大碳化程度出现的位置逐渐往样品内部迁移，这可能是因为 CC18-0 和 CC18-1.5 两组样品中整体失水少导致 CO_2 难以渗透，碳化反应只能发生在暴露面。因此，最终出现了整体碳化深度有限而表面碳化程度高的现象。

为了有效评估碳化深度与碳化程度的协同关系，本工作引入了碳化梯度及衰减系数总变化量作

为碳化行为的评估指标，如表 3 所示。由表 3 可知，一方面，碳化梯度定义为$|(\Delta\mu_p-\Delta\mu_c)/(d_p-d_c)|$(式中：$\Delta\mu_p$ 和 $\Delta\mu_c$ 分别为碳化诱导的衰减系数变化峰值和碳化锋面处的衰减系数变化值；d_c 为碳化锋面深度；d_p 为碳化程度峰值所在深度)；另一方面，碳化区衰减系数总变化量由碳化区衰减系数变化曲线的包络面积计算获取。干燥时间延长导致碳化梯度显著递减，即从CC18-0的0.0088 mm^{-1}逐步下降至CC18-24的 0.0061 mm^{-1}(最大降幅 30.7%)，碳化梯度的降低主要是由碳化程度峰值的降低与碳化深度的增加共同作用形成的。此外，随着干燥时间的增长，样品的碳化区衰减系数总变化量也随之增大(0.093 至 0.138)，碳化区衰减系数总变化量的增大反映了样品碳吸收总量的增加，即整体碳化程度的增大。

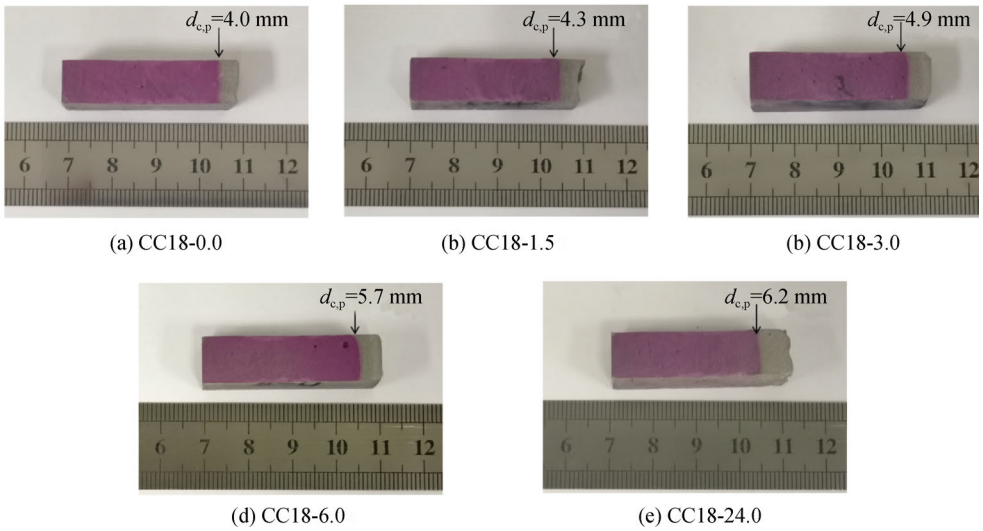
表 3　碳化深度、衰减系数变化量峰值和总变化量

Table 3　Carbonation depth, peak variation of attenuation coefficient, and total variation

Sample	CC18-0	CC18-1.5	CC18-3	CC18-6	CC18-24
Carbonation depth d_c/mm	4.3	4.9	5.2	6.1	6.6
Peak value of $\Delta\mu_c$	0.038	0.036	0.035	0.033	0.028
Envelope area of attenuation coefficient variation A	0.093	0.119	0.124	0.137	0.138

2.3　酚酞测试结果

样品在碳化结束后的酚酞酒精溶液喷洒结果如图 8 所示，而由酚酞指示剂测得的碳化深度如表 4 所示。由图 8 可见，所有样品都出现了明显的碳化，同时碳化深度随着干燥时间的增长而增长，CC18-0 组碳化深度最小，约为 4 mm，而 CC18-24 组碳化深度最大，约为 6.2 mm。基于酚酞测试结果，可以得到样品的碳化深度，并将 X 射线成像法测得的碳化深度进行对比验证。由图 8 和表 4 可以看出，酚酞测试的碳化深度要比 X 射线投影法中得出的整体碳化深度更小，这主要是因为酚酞法只能显示有限的碳化区域特征[25–26]，而 X 射线成像可以有效区分高碳化区和部分碳化区，这证明了利用 X 射线成像技术研究水泥浆体早期碳化养护的必要性。



(a) CC18-0.0　(b) CC18-1.5　(b) CC18-3.0

(d) CC18-6.0　(e) CC18-24.0

图 8　不同失水梯度样品的酚酞喷洒测试结果

Fig. 8　Phenolphthalein spray test results for samples with different moisture loss gradients

表 4　酚酞法和 X 射线成像法测得的碳化深度

Table 4　Carbonation depth measured by phenolphthalein method and X-ray imaging technique

Sample	Carbonation depth measured by phenolphthalein $d_{c,p}$ /mm	Carbonation depth measured by X-ray imaging $d_{c,xr}$ /mm	$\frac{d_{c,p}}{d_{c,xr}}$ /%
CC18-0	4.0	4.3	7.0
CC18-1.5	4.3	4.9	12.2
CC18-3	4.9	5.2	5.8
CC18-6	5.7	6.1	6.6
CC18-24	6.2	6.6	6.1

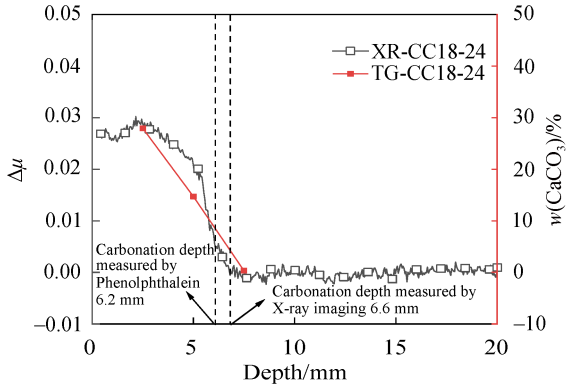
2.4 热重分析结果

热重测试中，550~950℃为碳酸钙受热分解释放 CO_2 的过程[27, 28]。其中，碳酸钙的质量分数可按式(4)进行计算：

$$m_{(cc)}=\frac{M_{(cc)}}{M_{(CO_2)}}\times\Delta m_{550-950\,℃} \tag{4}$$

式中：$m_{(cc)}$为加热粉末样品内 $CaCO_3$ 的质量分数；$M_{(cc)}$ 和 $M_{(CO_2)}$ 分别为 $CaCO_3$ 和 CO_2 的相对原子质量；$\Delta m_{550-950\,℃}$ 为粉末样品在 550~950 ℃内的质量变化比。基于热重分析计算碳化养护期间样品生成的碳酸钙含量。

图 9 为各种测试方法得到的碳化深度结果对比。由图 9 可以看出，X 射线成像结果得到的 CC18-24 的碳化剖面与热重分析得到的碳酸钙含量剖面较为吻合，证明了碳化－水信号分离计算的正确性以及利用 X 射线成像技术研究水泥浆体早期碳化养护的可行性。同时将 X 射线成像、热重分析及酚酞测试确定的碳化深度进行了对比，可以得知因为热重取样的局限性，热重分析无法直接得到的碳化深度；而酚酞酒精溶液只有在 pH 下降至 11.2 以下才会变色，因此无法界定部分碳化区域，因此 X 射线投影方法得出的碳化深度大于酚酞试剂测量结果。各组样品由酚酞法和 X 射线法测得的碳化深度误差分析如表 4 所示。经对比可见，X 射线投影是一种更精确的碳化测试方法。



w—Mass fraction.

图 9 各种测试方法得到的碳化深度结果对比

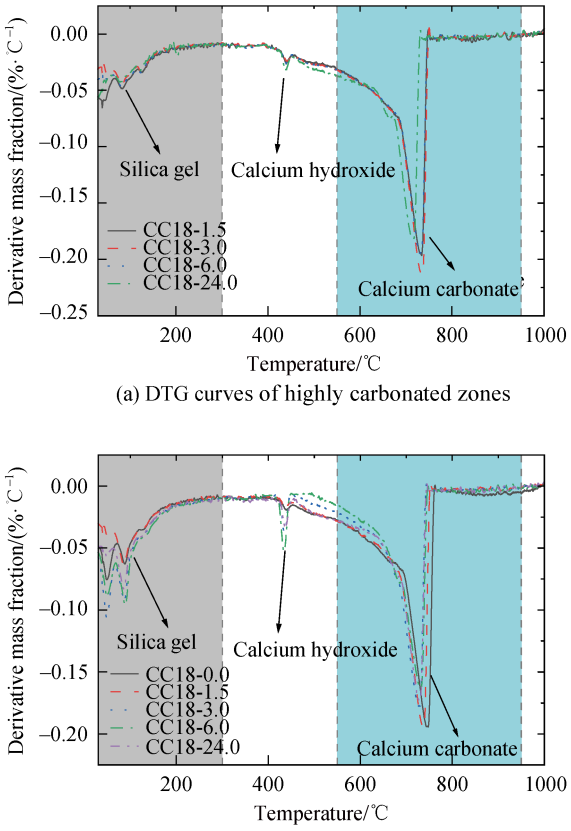
Fig. 9 Carbonation depth estimations *via* different test methods of CC-18-24

样品在不同深度下的热重结果及其对应 DTG 曲线如图 10 所示。由图 10 可以看出，3 个热分解峰分别代表 3 个热分解阶段：1) 30~300℃对应硅胶的受热分解；2) 400~500℃对应氢氧化钙受热分解释放水的过程；3) 550~950℃为碳酸钙受热分解释放 CO_2 的过程。

400~500℃对应 $Ca(OH)_2$ 受热分解释放水的过程，图 10 所示每组样品的高碳化区域在该温度区间都没有明显的质量损失，表明每组样品的高碳化区域的 $Ca(OH)_2$ 都已被碳化反应消耗完。而每组样品部分碳化区域 $Ca(OH)_2$ 的质量损失基本都比高碳化区域小，表明该区域只在部分地方发生碳化，这与 X 射线结果较为吻合。

550~950℃为碳酸钙受热分解释放 CO_2 的过程。CC18-0 组样品在 X 射线图中并未出现明显的完全碳化区。而如图 10 所示，CC18-1.5、CC18-3 和 CC18-6 组高碳化区域 $CaCO_3$ 质量损失相差不大且都大于 CC18-24 组，表明 CC18-24 组完全碳化区域碳化程度低于其他 3 组。大幅增大干燥时间会使得样品完全碳化区 $CaCO_3$ 含量出现明显降低。

然而，与高碳化区相比，部分碳化区的情况更加复杂。未干燥与干燥时间短的 CC18-0 和 CC18-1.5 两组样品在部分碳化区的 $CaCO_3$ 含量高而 $Ca(OH)_2$ 含量低，CC18-1.5 组 $CaCO_3$ 含量与完全碳化区相差不大。而干燥时间较长的 3、6 h 和 24 h 的 3 组样品部分碳化区的 $CaCO_3$ 含量小于高碳化区，而 $Ca(OH)_2$ 含量大于高碳化区。



(a) DTG curves of highly carbonated zones

(b) DTG curves of partially carbonated zones

图 10 高碳化区和部分碳化区的 DTG 曲线

Fig. 10 DTG curves of highly carbonated and partially carbonated zones

2.5　低场核磁测试结果

碳化后样品的孔隙率和孔隙分布如图 11 和图 12 所示。由图 11 和图 12 可见，样品的微观结构变化主要由碳化引起，对比低场核磁的测试结果可以间接反映出不同失水梯度作用对样品碳化养护效果的影响。同时，对刚脱模未干燥未碳化(ND 组)的样品进行孔隙结构分析，作为对比，体现失水对孔隙的影响。

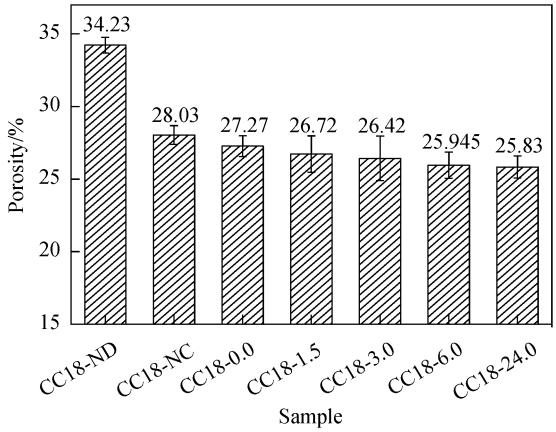


图 11　未碳化组和碳化组的整体孔隙率

Fig. 11　Overall porosity of non-carbonated and carbonated groups

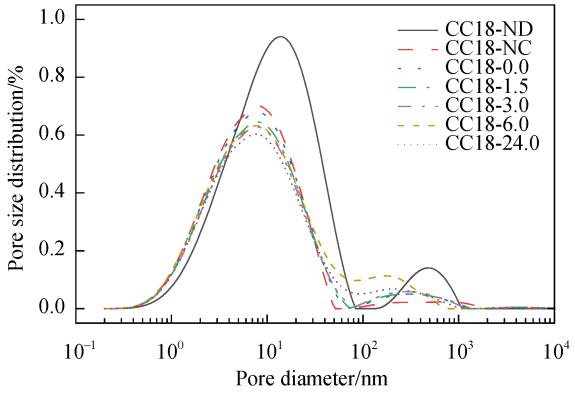


图 12　未碳化组和碳化组的孔径分布曲线

Fig. 12　Pore size distribution curves of non-carbonated versus carbonated groups

图 11 为未碳化组和碳化组的整体孔隙率。由图 11 可以看出，ND 组的总孔隙率约为 34.2%，而 NC 组的总孔隙率约为 28.0%，两者的总孔隙率相比于碳化养护组而言更大。ND 组相比于 NC 组总孔隙率大的原因是 NC 组经过了 3 d 的标准养护，水泥浆体中未反应的硅酸三钙和硅酸二钙进一步和水发生反应生成水化硅酸钙凝胶，填充孔隙，使得 NC 组总孔隙率小。在碳化养护组中，随着预处理期间质量损失的增大，碳化后样品的孔隙率减小，其中 CC18-24 组的孔隙率最小，约为 25.83%。

Liu 等[29]指出，孔径小于 10 nm 的孔为 C-S-H 凝胶孔、在 10~104 nm 之间的为毛细管孔，大于 104 nm 的为大孔。由图 12 可以看出，碳化养护后样品在 0~10 nm 的孔隙率无显著变化，说明碳化养护对样品中 C-S-H 凝胶孔的影响较小。样品在碳化养护后，大孔孔径范围内的孔隙数量降低。对于 10~104 nm 毛细孔而言，碳化养护表现出了对微观结构的明显修饰作用，样品在该范围内的孔隙率逐渐下降。

2.6　抗压强度测试结果

水泥试件经不同失水干燥处理及 CO_2 碳化养护后的抗压强度变化如图 13 所示。由图 13 可见，所有水泥试件抗压强度碳化后均增大，标准养护试件 3 d 约为 18.5 MPa。与参照组标准养护试件相比，经失水干燥养护及 CO_2 碳化养护后的水泥试件早期强度略有提高。6 h 干燥和 24 h 干燥后的水泥试件抗压强度分别较标准试件提高 16.5%和 21.1%。

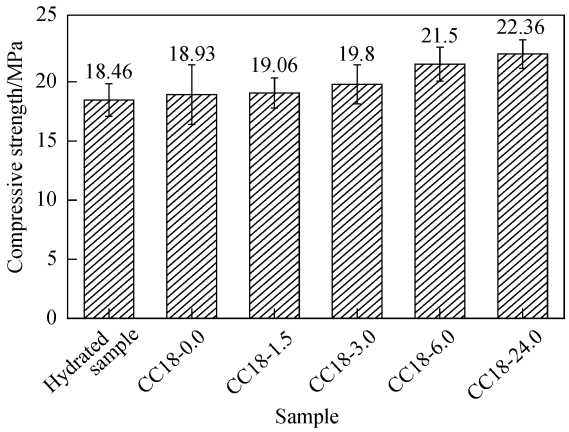


图 13　不同失水时间作用下碳化养护样品的抗压强度

Fig. 13　Compressive strength of carbonation-cured samples subjected to different moisture loss durations

3　讨论

虽然已有研究关注了样品整体的饱和度对碳化的影响，但本工作结果表明水泥基材料在干燥过程中存在失水空间差异，因而不同深度的碳化反应效率也存在差异。因此，本工作重点探究了局部失水分布与局部碳化分布的定量表征特征，并结合以往研究中饱和度对碳化的影响机制，建立局部失水分布与局部碳化分布之间的相关关系，解释失水分布/梯度对碳化的影响机制。

通过控制预处理的干燥时间，可以有效调控碳化程度与碳化深度，进而调控水泥基材料的早期强度。这主要是因为对干燥时间的控制可以实现样品内部的失水梯度的调控，如图 2 所示，样品内部不

同深度均出现失水差异，且靠近失水表面的区域失水量大于远离失水表面的区域。这主要是因为表面区域在外部环境(湿度、温度等)作用下发生了水分蒸发，形成了湿度梯度，驱使样品深处的水分传输至失水表面。整体失水量会随着干燥时间的延长而大幅增加，整体失水量的增加有利于提供 CO_2 的传输通道。同时，干燥时间较短时，样品表面与内部的失水量差异较小(图 3，CC18-1.5/3)，这是因为样品在该阶段的孔隙度及孔径较大(图 11，CC18-ND)，为内部水分向表面的传输提供了通道，因此，形成了较平缓的失水梯度。而随着干燥时间延长，样品进一步水化，孔隙结构细化，导致样品内部水分难以传输至样品表面，因此，样品表面的失水量大幅增加，而内部失水速度减缓，最终形成明显的失水梯度。由图 3 可以看出，表面失水量峰值和失水梯度随着干燥时间延长而增大。

已有研究表明，碳化反应过程中孔隙含水量对反应活性和二氧化碳扩散性存在明显的影响：孔隙含水量较低时，CO_2 和 Ca^{2+}的溶解速率受限，因此，限制了碳化反应速率；而过高的孔隙含水量会抑制二氧化碳的传输[16]。通过调控样品的失水梯度，改变了样品的孔隙含水量，影响了 CO_2 在试样内部的传输距离和速度及碳化反应速率，进而实现了对碳化行为的调控。

无干燥处理的样品在标准养护环境下虽然没有出现明显的失水现象(图 3，CC18-0)，在碳化过程中受碳化湿度环境(70%)的影响可能会出现表面失水的现象，进而促进了表面碳化(图 4，CC18-0)，然而碳化局限于样品表面，这主要是因为 CC18-0 样品内部残余湿度高，限制了 CO_2 的传输，碳化反应只在表层发生，实现较高的水泥基材料表面碳化程度。因此，CC18-0 样品的碳化深度最浅(表 4)，形成了陡峭的碳化梯度(表 3)。此类样品的碳化反应主要是由传输控制的。与之相比，干燥预处理后样品失水梯度增大，形成了更为平缓的碳化梯度。一方面 CC18-1.5/3 的干燥预处理时间较短，整体失水量较少，且形成的失水梯度较为平缓(图 4，CC18-1.5/3)，因此，CC18-1.5/3 样品依然存在碳化暴露面有较大的碳化程度而碳化深度较浅的现象，碳化梯度虽然较 CC18-0 更为平缓，但仍然较为陡峭(图 6，CC18-1.5/3)，这说明了虽然短暂的干燥处理增加了整体和表面失水量，但是表面孔隙残余含水量依然过高，仍一定程度抑制了 CO_2 的传输，导致碳化反应主要发生在样品表面，而表面水分的减少及 CO_2 向内部的传输轻微降低了样品表面的碳化程度(图 6)。在这 2 组样品中，表面碳化反应可能是由传输速率及溶解速率协同控制的，而内部碳化反应由传输速率控制。

随着干燥预处理时间成倍增长(CC18-6/24)，整体失水量明显增加，失水梯度更为陡峭，因此，表面失水量的增加导致了可供 CO_2 向样品内部扩散的通道增多。在这个过程中，样品表面残余水分较少且 CO_2 浓度减少，孔隙中的残余水分在样品表面区域无法形成足够厚且连续的水膜，CO_2 和钙离子的溶解和反应效率大幅下降[30]，导致表面碳化程度明显下降(图 6)。而样品内部失水量较少，在孔隙中形成一定厚度且连续的水膜，有利于 CO_2 的溶解及其与 Ca^{2+}的碳化反应[30]。同时，内部孔隙残余含水量较大也一定程度上限制了 CO_2 的扩散，将碳化反应限制在一定深度，因此，碳化锋面深度浅于失水锋面。即使大幅增长预干燥时长可以减少表面水分，但由于内部失水情况差异不明显，CC18-6 和 CC18-24 2 组样品的碳化深度变化量相差较小，而表面区域过于干燥，并不会在表面达到最大碳化程度。上述变化导致干燥预处理时间较长的样品形成的碳化梯度较为平缓(图 6，CC18-6/24)。高失水梯度样品表面区域的碳化反应由溶解速率控制，而内部碳化反应由传输速率控制。在未干燥及短时间干燥条件下，试样表面水分含量仍较大，CO_2 无法扩散到内部，只在外表面反应，导致外表面碳化程度高但碳化深度低。

水泥试件形成的显著失水梯度和碳化梯度进一步影响样品孔隙结构及强度的演变规律。碳化梯度的分布特征反映了材料内部沿深度方向形成的非均匀性能分布，成为调控水泥基材料强度发展的关键因素。整体而言，碳化程度较高的区域具有更显著的性能提升。陡峭的碳化梯度导致样品整体碳化程度相对有限，形成明显的性能阶梯，因此，碳化梯度较陡的试样总体强度提升幅度较小。反之，平缓的碳化梯度虽伴随局部碳化程度的降低，但具有更大的碳化深度，最终实现更高的整体碳化程度，从而带来更显著的强度提升。这是因为当样品进行碳化养护时，生成的碳酸钙与硅胶会填充孔隙，起到密实化和强化作用。同时，生成的碳酸钙也会与 C-S-H 凝胶交织在一起，形成更坚固的复合体，而表 3 和图 11 表明，通过调控失水梯度，可以提升样品的总体碳化量，进而增强毛细孔填充效果，使水泥基材料基体进一步密实化，而基体的密实化能够

有效提升水泥净浆的抗压强度(图 13)[31]。

此外，表层的过度碳化会造成水泥基材料的耐久性劣化，这主要是因为过度碳化会消耗水泥基材料的氢氧化钙和 C-S-H，进而导致孔隙粗化，提高整体孔隙率，同时过量的碳酸钙生成会导致基体开裂，为水分和有害离子传输提供了通道[6, 32]，而以本工作中设定的干燥与碳化处理制度进行碳化养护后，样品孔隙率降低，且未发现基体开裂现象，因此，可以认为碳化制度未造成过度碳化及耐久性损伤。

综上，通过形成更为陡峭的失水梯度和更为深入的失水锋面，能够促进 CO_2 的传输，形成平缓的碳化梯度，进而提升样品的整体碳化程度且增大碳化区域面积，有效填充毛细孔，降低总孔隙率，最终提升水泥基材料的抗压强度。

4　结论

1) 通过调控干燥预处理时间，可实现碳化养护前水泥基材料内部失水梯度的定向设计。短时干燥处理(如 1.5/3 h)因初始孔隙较大，水分迁移阻力小，形成平缓失水梯度；而长时干燥(如 6、24 h)因水化程度提高、孔隙细化，阻碍内部水分向外传输，导致表面失水量剧增，形成陡峭失水梯度。

2) 不同的失水梯度显著影响碳化反应路径，其中未干燥/短时干燥组(CC18-0/1.5/3)表面含水量高，CO_2 扩散受阻，因此碳化反应由传输速率主导，碳化反应集中于表层，形成高碳化程度但深度浅。长时干燥组(CC18-6/24)样品表面含水量低，拓宽了 CO_2 扩散通道，促使碳化向内部延伸，而内部连续水膜则提升了钙离子溶解效率，形成平缓碳化梯度。此时，表面反应受溶解速率控制，内部受传输速率控制，实现碳化区域面积最大化。

3) 通过干燥时间调控失水梯度、碳化梯度与深度，进而调控水泥基材料的力学性能。陡峭失水梯度驱动 CO_2向内部扩散，提升整体碳化程度，即吸碳量和碳酸钙含量增加。碳酸钙含量的增加促进了孔隙结构的进一步优化，显著降低了基体总孔隙率，进而增强抗压强度，在该碳化制度下最大抗压强度对应的干燥预处理时间为 24 h。

参考文献:

[1] GUO Z, WANG Y, PEI T R, et al. Effect of different hydration–carbonation processes on the reaction degree of cement[J]. Constr Build Mater, 2024, 451: 138743.

[2] ZHAN B J, XUAN D X, POON C S, et al. Effect of curing parameters on CO_2 curing of concrete blocks containing recycled aggregates[J]. Cem Concr Compos, 2016, 71: 122–30.

[3] MA Z H, JIANG L, JIANG Y, et al. Utilizing waste cement for carbon dioxide sequestration and capture: the role of water content on the growth of calcium carbonate[J]. ACS Sustainable Chem Eng, 2024, 12(6): 2273–88.

[4] LIU Z, MENG W N. Fundamental understanding of carbonation curing and durability of carbonation-cured cement-based composites: A review[J]. J CO_2 Util, 2021, 44: 101428.

[5] STEINER S, LOTHENBACH B, PROSKE T, et al. Effect of relative humidity on the carbonation rate of portlandite, calcium silicate hydrates and ettringite[J]. Cem Concr Res, 2020, 135.

[6] AUROY M, POYET S, LE BESCOP P, et al. Impact of carbonation on unsaturated water transport properties of cement-based materials[J]. Cem Concr Res, 2015, 74: 44–58.

[7] SHI C J, HE F Q, WU Y Z. Effect of pre-conditioning on CO_2 curing of lightweight concrete blocks mixtures[J]. Constr Build Mater, 2012, 26(1): 257–67.

[8] SERCOMBE J, VIDAL R, GALLÉ C, et al. Experimental study of gas diffusion in cement paste[J]. Cem Concr Res, 2007, 37(4): 579–88.

[9] GHOLIZADEH-VAYGHAN A, BELLINKX A, SNELLINGS R, et al. The effects of carbonation conditions on the physical and microstructural properties of recycled concrete coarse aggregates[J]. Constr Build Mater, 2020, 257: 119486.

[10] TONOLI G H D, CARMELLO G F, FIORONI C A, et al. Influence of the initial moisture content on the carbonation degree and performance of fiber–cement composites[J]. Constr Build Mater, 2019, 215: 22–29.

[11] GALAN I, ANDRADE C, CASTELLOTE M. Natural and accelerated CO_2 binding kinetics in cement paste at different relative humidities[J]. Cem Concr Res, 2013, 49: 21–28.

[12] GOLMAKANI A, FATEMI S, TAMNANLOO J. CO_2 Capture from the Tail Gas of Hydrogen Purification Unit by Vacuum Swing Adsorption Process, Using SAPO-34[J]. Ind Eng Chem Res, 2016, 55(1): 334–350.

[13] YAMG Y H, XU G, TIAN B. Carbonation characteristics of cement-based materials under the uniform distribution of pore water[J]. Constr Build Mater, 2021, 275: 121450.

[14] JIANG Y, MA Z H, GAO Y N, et al. A review on the impact of water in accelerated carbonation: Implications for producing sustainable construction materials[J]. Cem Concr Compos, 2025, 157: 105902.

[15] ZHANG D, CAI X H, JAWORSKA B. Effect of pre-carbonation hydration on long-term hydration of carbonation-cured cement-based materials[J]. Constr Build Mater, 2020, 231: 117122.

[16] HO L S, NAKARAI K, OGAWA Y, et al. Effect of internal water content on carbonation progress in cement-treated sand and effect of carbonation on compressive strength[J]. Cem Concr Compos, 2018, 85: 9–21.

[17] HE P P, SHI C J, TU Z J, et al. Effect of further water curing on compressive strength and microstructure of CO_2-cured concrete[J]. Cem Concr Compos, 2016, 72: 80–88.

[18] HONG S X, JIANG R R, ZHENG F, et al. Quantitative characterization of carbonation of cement-based materials using X-ray imaging[J]. Cem Concr Compos, 2022, 134: 104794.

[19] 中国建筑科学研究院. GB/T 50081—2019. 混凝土物理力学性能试验方法标准[S]. 北京: 中国建筑工业出版社.

[20] ZHENG F, DONG B Q, Hong S X, et al. A2D rapid quantitative method for wetting and drying process in cementitious materials based

on X-ray radiography[J]. Measurement, 2024, 237.
[21] 中国建筑科学研究院. GB/T 50082—2009. 普通混凝土长期性能和耐久性能试验方法标准[S]. 北京: 中国建筑工业出版社
[22] American Society of Testing Materials, ASTM C1872-18: Standard Test Method for Thermogravimetric Analysis of Hydraulic Cement: [S]. US: American Society of Testing Materials, 2018.
[23] LIU W, DU H Y, YI P, et al. The early hydration and rheological characteristics of cement paste containing co-combustion fly ash[J]. J Build Eng, 2023, 78: 107736.
[24] 中国建筑材料科学研究院. GB/T 17671—2021. 水泥胶砂强度检验方法[S]. 北京: 中国标准出版社.
[25] JI Y S, WU M, DING B D, et al. The experimental investigation of width of semi-carbonation zone in carbonated concrete[J]. Constr Build Mater, 2014, 65: 67–75.
[26] CHANG C F, CHEN J W. The experimental investigation of concrete carbonation depth[J]. Cem Concr Res, 2006, 36(9): 1760–1767.
[27] CHEN T F, LI L S, GAO X J, et al. New insights into the role of early accelerated carbonation on the calcium leaching behavior of cement paste[J]. Cem Concr Compos, 2023, 140: 105103.
[28] ZHANG D, LI V C, ELLIS B R. Optimal Pre-hydration Age for CO_2 Sequestration through Portland Cement Carbonation[J]. ACS Sustainable Chem Eng, 2018, 6(12): 15976–15981.
[29] LIU M, HONG S X, WANG Y S, et al. Compositions and microstructures of hardened cement paste with carbonation curing and further water curing[J]. Constr Build Mater, 2021, 267: 121724.
[30] GAO Y N, JIANG Y, TAO Y, et al. Accelerated carbonation of recycled concrete aggregate in semi-wet environments: A promising technique for CO_2 utilization[J]. Cem Concr Res, 2024, 180: 107486.
[31] HU X, SHI C J, SHI Z G, et al. Compressive strength, pore structure and chloride transport properties of alkali-activated slag/fly ash mortars[J]. Cem Concr Compos, 2019, 104.
[32] PAN X, SHI C J, HU X, et al. Effects of CO_2 surface treatment on strength and permeability of one-day-aged cement mortar[J]. Constr Build Mater, 2017, 154: 1087–1095.

Formation Mechanism of Carbonation Profiles in Cement Pastes by Pre-Conditioning

HONG Shuxian, *YU Xinxi*, *ZHOU Longyan*, *JIANG Qiaoqiao*, *PENG Yi*, *WANG Xu*, *FAN Shengxin*, *DONG Biqin*
(College of Civil and Transportation Engineering, Guangdong Provincial Key Laboratory of Durability for Marine Civil Engineering, Shenzhen Key Laboratory for Low-carbon Construction Material and Technology, Shenzhen University, Shenzhen 518000, Guangdong, China)

Extended Abstract

Introduction Early-age carbon dioxide (CO_2) curing of concrete is an innovative carbon utilization technology, enabling resource-oriented utilization of carbon dioxide that allows carbon neutrality. Thus, it is a promising technology for the concrete industry. Enhancing carbonation reactivity contributes to the promotion of CO_2 curing technology. Among all the influencing factors, previous studies showed that water loss during pretreatment could be one of the most important parameters affecting carbonation degree and mechanical properties of concrete.

In a previous work, water loss was primarily evaluated based on the overall water loss of specimens. Note that water loss varies significantly at different depths due to the complex pore structure and heterogeneity of cement-based materials. This causes depth-dependent carbonation reaction, forming gradients in both water content and carbonation degree. However, the existing studies neglect water loss gradient and its impact on carbonation. This is mainly due to a lack of direct visualization and continuous tracking of moisture distribution and carbonation products inside concrete by conventional testing methods, making it difficult to accurately characterize water loss gradients and carbonation gradients. A more precise and efficient water loss and carbonation characterization method is required.

This study was to apply X-ray imaging technology to non-destructively and quantitatively track the formation of water loss gradients and carbonation gradients in cement-based materials at different pre-drying durations.

Methods This study cast cube specimens with the size of 40 mm for compressive strength tests and specimens with the sizes of 10 mm × 20 mm × 40 mm for X-ray imaging tests. The raw materials consisted of water and P.O.42.5 cement at a water-to-binder ratio of 0.4. X-ray imaging technology was employed to capture projection images of the 20 mm × 40 mm face of the specimens before and after pre-drying and accelerated carbonation.

Image processing for water loss distribution and carbonation distribution included field non-uniformity correction, normalization, image registration, grayscale difference calculation, water loss distribution characterization, attenuation coefficient variation calculation, carbonation-water signal decoupling and carbonation distribution characterization.

Furthermore, a phenolphthalein alcohol solution was used to validate carbonation depths determined by X-ray imaging. The mechanism of different water loss gradients on carbonation behavior was analyzed by thermogravimetric analysis (TGA). The porosity changes of carbonated specimens under different water loss gradients was characterized by low-field nuclear magnetic resonance, thereby elucidating the formation mechanisms of water loss gradients and carbonation gradients. The 3-d compressive strength of the specimens was determined using a universal testing machine.

Results and discussion Based on the X-ray projection images, water loss mapping and water loss-depth curves are obtained, revealing a decrease of water loss with increasing depth. Besides, the overall water loss increases with prolonging pre-drying duration.

A substantial water loss difference appears between the surface and internal sample core, forming a distinct water loss gradient. The peak water loss and the water loss gradient both increase with extended drying.

In addition, 2D mapping of attenuation coefficient variation caused by carbonation and the corresponding variation along the depth can be acquired, introducing carbonation gradient and total attenuation coefficient change as indicators for carbonation behavior. Among all the samples, the sample CC18-0 exhibits the shallowest carbonation depth, with the maximum carbonation degree appearing at the surface. Carbonation depths of sample CC18-1.5/3/6 show a slight increase with drying time, while the decline rate within the partially carbonated zone remains consistent. Finally, the sample CC18-24 achieves the maximum carbonation depth of approximately 6.6 mm, while its peak carbonation degree is the lowest. Moreover, prolonged drying time leads to a significant decrease in the carbonation gradient, dropping progressively from 0.0088 mm^{-1} for the sample CC18-0 to 0.0061 mm^{-1} for the sample CC18-24 (a maximum reduction of 30.7%). In addition, the total attenuation coefficient change within the carbonated zone also increases with drying time (from 0.093 to 0.138).

A comparison of carbonation depths determined by X-ray imaging, thermogravimetric analysis, and the phenolphthalein test indicates that X-ray imaging is a more precise carbonation testing method. Furthermore, the porosity of carbonated specimens decreases as water loss during pre-treatment increases. The sample CC18-24 has the lowest porosity of approximately 25.29%. Eventually, the early-age strength of carbonated cement pastes slightly improve from hydrated samples.

The design of water loss gradients in cement-based materials prior to carbonation can be achieved *via* controlling the pre-drying duration. In general, short pre-drying period results in a gentle water loss gradient due to the larger pores and lower resistance to moisture migration. The high surface water content impedes CO_2 diffusion, causing the carbonation reaction to be dominated by the transport rate of CO_2. As a result, carbonation mainly occurs near the surface, leading to a high carbonation degree that is limited to a shallow depth. In contrast, a prolonged pre-drying promotes a higher hydration degree and pore refinement, which hinders outward moisture migration. This leads to a sharp increase in water loss at the surface, forming a steep water loss gradient. The low surface water content broadens the pathways for CO_2 diffusion, facilitating a deeper carbonation penetration. Meanwhile, the presence of continuous water films in the internal regions enhances the dissolution efficiency of calcium ions, resulting in a gradual carbonation gradient. The steep water loss gradient drives CO_2 to diffuse inward, thereby increasing the overall carbonation degree, which is evidenced by higher CO_2 uptake and calcium carbonate content. The increased calcium carbonate content further refines the pore structure, significantly reducing the total porosity of the matrix, which in turn enhances the compressive strength.

Conclusions The samples subjected to shorter drying durations exhibited less and more uniform moisture losses from surface to interior. The relatively high residual moisture at the surface favored *in-situ* carbonation but limited CO_2 transport inwards, resulting in a higher surface carbonation degree with a shallower carbonation depth. Conversely, the samples dried longer experienced a greater moisture loss and an increased surface drying. The lower surface moisture facilitated CO_2 diffusion and slowed down calcium ion dissolution, leading to a relatively lower surface carbonation degree yet a greater carbonation depth. It was indicated that a steep moisture loss gradient promoted CO_2 diffusion, enhancing the overall carbonation degree of cement pastes. This significantly reduced total porosity, which consequently improved the compressive strength.

Keywords carbonation curing; X-ray imaging; non-destructive testing; moisture loss profile; carbonation profile