

高原低压低湿作用下水泥水化与孔结构发展

陈 歆, 刘 旭, 董淑慧, 葛 勇

(哈尔滨工业大学 交通科学与工程学院, 黑龙江 哈尔滨 150090)

摘要: 根据工程实践惯例与高原自然环境特点, 模拟了低压低湿耦合作用下的典型养护模式, 研究了各养护模式下水泥水化进程与水泥浆体内部孔结构发展特点. 水泥水化的进程由硬化浆体中化学结合水的含量表征, 通过高温灼烧测得. 水泥净浆的孔结构发展通过压汞法和氮吸附法进行分析, 得到的孔结构特点同时也是评价水泥水化进程的重要依据. 最后以混凝土的抗压强度试验验证上述对水泥净浆在化学与物理层面的分析. 结果表明: 同样的相对湿度下, 低压养护的水泥净浆化学结合水比常压养护的少, 凝胶孔发展也不如常压养护的充分, 即水化进程有一定程度的滞后. 若过早停止保湿养护进入低压低湿环境, 28 d 时水泥净浆中将残留更多的毛细孔. 试验各组混凝土均能达到设计强度等级, 但当浸水养护只有 7 d, 养护气压低至 61 kPa 且相对湿度低至 30% 时, 强度富余非常有限.

关键词: 混凝土; 水泥净浆; 水化; 孔结构; 低气压

中图分类号: TU528

文献标志码: A

文章编号: 1006-7930(2021)02-0202-06

Cement hydration and pore structure development in low air pressure and low humidity

CHEN Xin, LIU Xu, DONG Shuhui, GE Yong

(School of Transportation Science and Engineering, Harbin Institute of Technology, Harbin 150090, China)

Abstract: Typical curing modes considering low air pressure and low relative humidity were designed based on normal engineering practice and physico-geographical environment of plateau regions. Cement paste specimens were cured in these designed modes and subsequently experienced a series of tests to investigate the hydration level and pore structure development. The level of cement hydration was characterized by the content of chemically-combined water, which was tested by the loss on ignition. Pore structure development of hardened cement paste was analyzed by both mercury intrusion and nitrogen absorption. The pore structure provided extra basis for cement hydration evaluation. Finally, compressive strength test of concrete was conducted to verify the above chemical and physical analyses on hardened cement paste. Results show that in the same relative humidity, the hydration level of cement paste cured in low air pressure is lower than that in ordinary air pressure, presenting as lower content of chemically-combined water and less gel pores. More capillary pores would remain at 28 d age if moisture retention untimely discontinues to make the cement paste expose to an environment with low air pressure and low humidity. Moreover, although all tested concrete groups satisfy the anticipated strength grade, there is a very limited surplus for concrete cured in 61 kPa & RH 30% after only 7 d water immersion.

Key words: concrete; cement paste; hydration; pore structure; low air pressure

低气压与低湿度都是高原地区的典型气候特征, 二者对混凝土中水泥水化进程与水泥浆体中孔结构发展均有不良影响^[1-2]. 水泥水化是无机化学反应, 且无气体参与或生成, 故其化学反应本身不受气压的影响. 但是, 水泥水化的持续时间较长, 在水泥浆体终凝后仍然需要水分补充. 根据道尔顿蒸发定律, 气压越低, 蒸发速率越大. 因此, 在高原低气压环境中, 硬化水泥浆体孔隙

中储存的物理水迅速散失, 不利于水化反应的持续进行. 另外, 根据中央气象台网站提供的实况信息, 高原地区的相对湿度往往低于低海拔地区, 低湿度环境同样不利于水泥的持续水化.

胡玉兵^[3]研究了高原地区混凝土内外部结构性能的差异, 发现高原地区混凝土表面层较内部孔隙率与平均孔径更大, 有害孔和多害孔更多. 马新飞^[1]研究了低气压低湿度环境对混凝土微观孔结

收稿日期: 2020-09-06

修改稿日期: 2021-03-17

基金项目: 国家国际科技合作专项项目(ISTCP 2014DFR81000)

第一作者: 陈 歆(1991—), 男, 博士生, 主要从事特殊环境作用下混凝土材料与结构性能研究. E-mail: xin.chen@alu.hit.edu.cn

通信作者: 葛 勇(1962—), 男, 博士, 教授, 博士生导师, 主要从事土木工程材料研究. E-mail: hitbm@163.com

构的影响，但由于选取砂浆作为研究对象，压汞分析时杂峰较多。葛昕^[2, 4-6]研究了气压和湿度对混凝土力学性能的影响，将混凝土在仅 3 d 标准养护后就置于低压低湿环境中，更关注养护条件不良时环境作用对早龄期混凝土的影响。Zhang^[7]采取类似的方法，对纳米材料改性的水泥砂浆强度发展进行了研究。然而在更多的实际工程中，混凝土构件在成型 7 d 内都要按规范进行洒水保湿养护，其早龄期的强度发展受环境湿度的影响很小。纳启财^[8]研究了青海省海南藏族自治州河卡山地区 7 月、9 月和 11 月不同养护制度下的混凝土性能，指出了高原上早期保温保湿养护的重要性，但没有剥离单一环境因素(同时控制其他无关变量)进行分析。何锐^[9]与陈华鑫^[10]研究了拉萨达孜区室外养护与标准养护的混凝土的性能差异，但没有单独考查室外低温、低湿等因素带来的影响。

总的来说，目前基于高原地区低压低湿环境下水泥水化与浆体孔结构发展的研究还较少，也未引起工程界的重视。基于此，文章根据工程实践惯例与高/低海拔地区自然环境特点模拟了 6 种养护模式，从化学层面和物理(微观)层面研究了各模式下水泥水化进程与水泥浆体内部的孔结构发展，最终通过混凝土的宏观力学性能加以验证，为健全低压低湿环境下混凝土的养护机制、提高高原地区混凝土工程质量提供理论指导。

1 材料与方法

1.1 原材料与配合比

试验用水泥为天鹅牌 P · O 42.5 普通硅酸盐水泥，细集料为细度模数 2.6 的河砂，粗集料为 5~25 mm 连续级配碎石，拌和水为自来水。试验水泥净浆与混凝土的水灰比皆为 0.45，试验混凝土中水泥：水：砂：石子=1：0.45：2：2.7。水泥净浆参照《水泥标准稠度用水量、凝结时间、安定性检验方法》(GB/T 1346-2011)搅拌，搅拌结束后成型为饼状试件；混凝土参照《普通混凝土拌合物性能试验方法标准》(GB/T 50080-2016)搅拌，参照《混凝土物理力学性能试验方法标准》(GB/T 50081-2019)成型，试件为棱长 100 mm 的立方体。

1.2 养护条件分组与控制

根据《混凝土结构工程施工规范》(GB 50666-2011)，采用硅酸盐水泥、普通硅酸盐水泥或矿渣硅酸盐水泥配制的混凝土保湿养护时间不应少于 7 d。此外，采用缓凝型外加剂/大掺量矿物掺合料配制的混凝土、抗渗混凝土、强度等级 C60 及以

上的混凝土、后浇带混凝土等保湿养护时间不应少于 14 d。因此，试验研究中的养护模式分为“7 d 浸水养护+21 d 设计养护”与“14 d 浸水养护+14 d 设计养护”两类。在设计养护中，研究了常压中湿(101 kPa, RH 60%)、低压中湿(61 kPa, RH 60%)和低压低湿(61 kPa, RH 30%)三种情况。具体养护条件分组见表 1。低压养护在密闭的低压罐内进行，通过放置生石灰粉末(盒装)或清水(杯装)控制罐体内的相对湿度，分别见图 1(a)与图 1(b)。

表 1 养护条件分组
Tab. 1 Grouping of curing conditions

编号	养护条件		
	1~7 d ¹	8~14 d	15~28 d
N-721-30 ²	浸水养护	61 kPa, RH 30%	61 kPa, RH 30%
N-721-60	浸水养护	61 kPa, RH 60%	61 kPa, RH 60%
O-721-60 ³	浸水养护	101 kPa, RH 60%	101 kPa, RH 60%
N-1414-30	浸水养护	浸水养护	61 kPa, RH 30%
N-1414-60	浸水养护	浸水养护	61 kPa, RH 60%
O-1414-60	浸水养护	浸水养护	101 kPa, RH 60%

注：1. 1 d 龄期实际为带模覆膜养护，2 d 龄期真正开始浸水养护；
2. N 指 Negative，表示养护气压为负压；3. O 指 Ordinary，表示养护气压为常压。

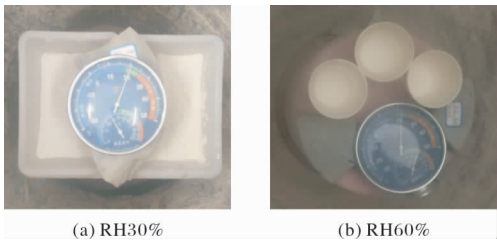


图 1 低压罐内的湿度调节方法

Fig. 1 Methods for humidity control in the low-pressure tank

1.3 水泥净浆试验

水泥净浆的水化程度在化学层面采用烧失量(Loss on Ignition, LOI)试验进行评价。当试验所用水泥批次统一时，水泥的烧失量一定，水泥净浆的烧失量主要受其内化学结合水含量的影响。试验水泥净浆均养护至 28 d 龄期后破碎研磨成粒径 80 μm 以内的粉末，再利用异丙醇终止水化后于 100 ℃烘箱内烘干至恒重。将处理好的样品在 950 ℃的马弗炉中内灼烧至恒重，计算灼烧过程中

的质量损失与灼烧前质量的比值。

研究涉及的水泥净浆孔结构分析主要有压汞法(Mercury Intrusion Porosimetry, MIP)与氮吸附法(Nitrogen Absorption Porosimetry, NAP)。试验水泥净浆均养护至28 d龄期后破碎,修剪/研磨至试验要求的形状并利用异丙醇中终止水化。压汞法孔结构分析样品尺寸为3~5 mm(球状),试验利用美国Micromeritics公司生产的Auto Pore IV 9500全自动压汞仪进行,孔径分析范围为6 nm~300 μm ;氮吸附法孔结构分析样品尺寸为20~80 μm ,试验利用北京精微高博科学技术有限公司生产的JW-BK112比表面积及孔径分析仪进行,孔径分析范围为1.7~300 nm。

1.4 混凝土试验

研究涉及的混凝土试验为混凝土抗压强度试验,试验步骤参照《混凝土物理力学性能试验方法标准》(GB/T 50081-2019)。

2 结果与分析

2.1 养护气压与湿度对硬化水泥净浆结合水含量的影响

对不同养护条件下的28 d水泥净浆进行烧失量试验,结果见图2。

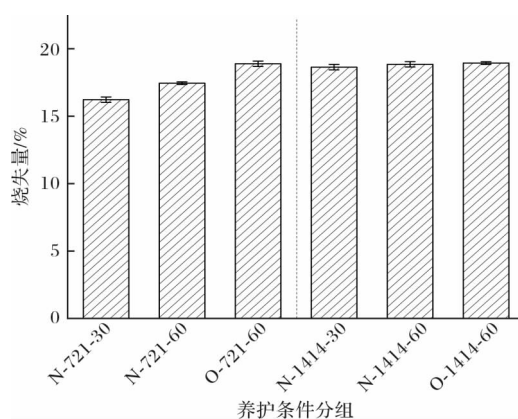


图2 不同养护条件下硬化水泥净浆的烧失量

Fig. 2 LOI of hardened cement paste cured in different conditions

从图2可见,对于14 d浸水养护后转设计养护至28 d的试验组,结合水含量彼此间差别不大:N-1414-30和N-1414-60对比O-1414-60,烧失量分别仅减少1.6%和0.5%(比值,非差的绝对值,下文同)。对于7 d浸水养护后转设计养护至28 d的试验组,N-721-30对比N-721-60烧失量减少7.0%,说明结合水含量随设计养护阶段相对湿度降低而减少;而N-721-60对比O-721-60烧失量减少7.6%,说明结合水含量随设计养护阶段气压降低而减少。由此

可知,7 d后的养护湿度仍会影响28 d时的水化程度。另外,相同温度与相对湿度下,气压越低,蒸发速率越大,即水泥净浆孔隙中物理水的散失越快,不利于水泥净浆的持续水化。

2.2 养护气压与湿度对硬化水泥净浆中毛细孔的影响

对不同养护条件下的28 d水泥净浆进行压汞法孔结构分析,得到各自的孔隙率与平均半径见图3,具体孔半径分布见图4。其中,平均半径是根据孔隙总体积与总表面积(即 $2V/A$)所求得。从图3可见,低压与低湿的养护环境都会使水泥净浆的孔隙率与平均孔半径偏大:N-721-30对比O-721-60孔隙率与平均孔半径分别增加26.4%和49.6%;N-1414-30对比O-1414-60孔隙率与平均孔半径分别增加19.6%和39.7%。该趋势与马新飞^[1]用砂浆压汞所得出的结论大体相似。

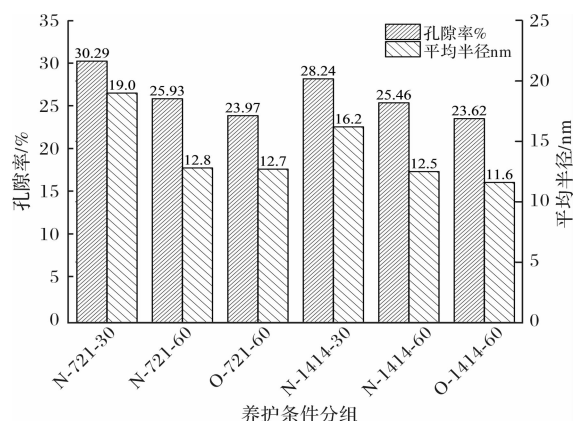


图3 不同养护条件下硬化水泥净浆孔隙率与平均半径(MIP)

Fig. 3 Porosity and average pore radius of hardened cement paste cured in different conditions(MIP)

Mindess^[11]按孔径大小将硬化水泥净浆的孔隙分为层间孔(≤ 0.5 nm)、微孔(0.5~2.5 nm)、独立的小毛细孔(2.5~10 nm)、中毛细孔(10~50 nm)和大毛细孔(50~10 000 nm),其中前三者合称凝胶孔而后两者合称毛细孔。试验用压汞仪所能分析的孔半径在3 nm以上(即孔径6 nm),且在接近该下限时往往误差较大(压力过大导致细小孔隙被破坏),所以对于硬化水泥净浆压汞法所能有效分析的主要为其中的毛细孔。这些毛细孔来源于水泥净浆中残存的原充水空间,将对水泥基材料的强度和渗透性带来不良影响。随着水化反应的进行,这些毛细孔会被水化产物局部堵塞、填充,导致其体积减小。通过图4(a)和(b)中不难发现,在设计养护阶段处于低压低湿环境的水泥净浆,其半径在400 nm(直径800 nm)以内的毛细孔体积明显大于常压或低压中湿养护的水泥净浆。

而在设计养护阶段处于低压中湿(RH 60%)环境的水泥净浆,其半径在 400 nm(直径 800 nm)以内的毛细孔体积略大于常压下同相对湿度养护的水泥净浆,但总体上看影响不大。

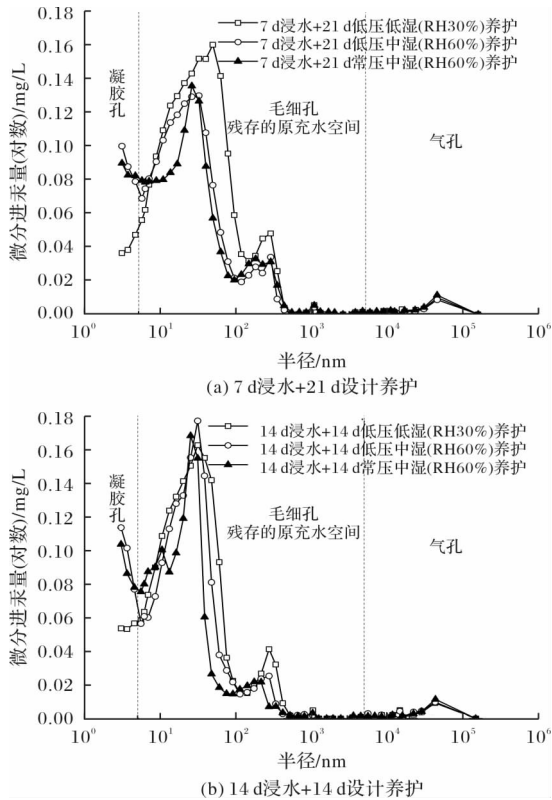


图4 不同养护条件下硬化水泥净浆的孔半径分布(压汞法)
Fig. 4 Pore radius distribution of hardened cement paste cured in different conditions(MIP)

低压低湿环境中,水泥净浆中的水分较其在常压和中湿环境中散失更快,部分在原充水空间外围、本该与未水化的水泥颗粒继续反应的自由水蒸发了,没有起到产生水化产物并局部填充原充水空间的效果。因此,表现出了较大的孔隙率和毛细孔尺寸。

2.3 养护气压与湿度对硬化水泥净浆中凝胶孔的影响

相对于压汞法,氮吸附法所能分析的孔径更小,能分析部分压汞法无法分析的凝胶孔。对不同养护条件下的 28 d 水泥净浆进行氮吸附法孔结构分析,得到各自的孔体积与平均直径见图 5。从图 5 可知,各养护条件下的水泥净浆在 1.7~300 nm 之间(氮吸附法的分析范围)孔累计体积差别不大,均在 0.063~0.067 cm³/g 之间,但各组的平均孔径呈现出了一定的差异性。浸水养护至 7 d 转入低压环境的水泥净浆的平均直径明显大于 7 d 浸水养护后转常压养护的水泥净浆, N-721-30 和 N-721-60 对比 O-721-60 孔径分别增大 98.4% 和 67.8%; 而后者与浸水养护

至 14 d 后才转入设计养护的水泥净浆相似,孔径在 8.186~9.617 nm 之间。

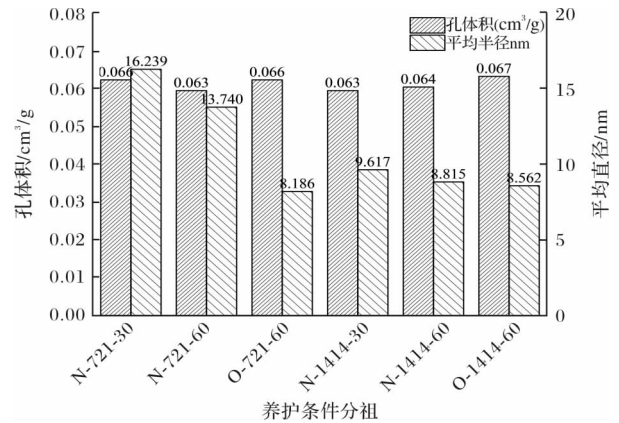


图5 不同养护条件下硬化水泥净浆孔体积与平均直径(氮吸附法)

Fig. 5 Pore volume and average diameter of hardened cement paste cured in different conditions(NAP)

截取孔径在 1.7(测量下限)~100 nm 内的分析结果,见图 6。其中,孔径在 10 nm 以内的凝胶孔是水化产物 C-S-H 本体的一部分,认为是无害孔,对混凝土强度无不良影响^[12-13]。随着水化的进行,硬化水泥净浆中毛细孔的体积减小,C-S-H 凝胶体积增加,作为其本体组成部分的凝胶孔也相应增加^[12]。

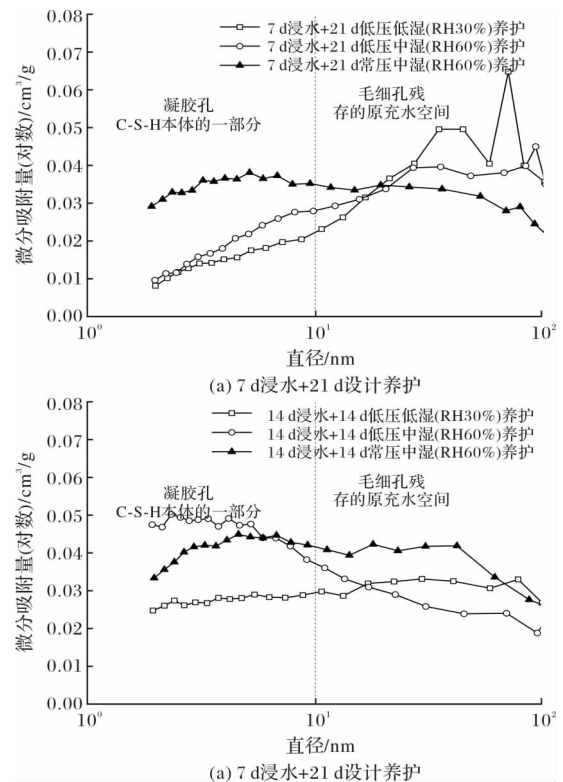


图6 不同养护条件下硬化水泥净浆的孔径分布(氮吸附法)
Fig. 6 Pore diameter distribution of hardened cement paste cured in different conditions(NAP)

从图 6(a)中可以清晰地看到, 7 d 浸水养护后进行 21 d 低压养护的水泥净浆凝胶孔发育水平低于 7 d 浸水后进行 21 d 常压养护的水泥净浆。另外通过对比图 6(a)与图 6(b)可见, 经过 14 d 的浸水养护的水泥净浆即使后期处于低压低湿(RH 30%)环境中, 其凝胶孔发育也能大致达到常压下 7 d 浸水并 21 d 中湿(RH 60%)养护后的水平。因此, 在高原低气压环境下施工时, 可通过延长混凝土的洒水保湿养护时间, 从而使其性能与平原常压环境下施工的混凝土相当。须指出的是, 受到测量范围的限制, 氮吸附法不能分析层间孔和 1.7 nm 以下的微孔, 即无法覆盖所有凝胶孔, 故仅为定性分析提供参考。

由于低压低湿环境加速了水分散失, 一定程度上减少了原本可参与后期水化的自由水, 致使水化产物有所减少, 在试验中反映为毛细孔体积增大(见文章 2.2)而作为水化产物本体一部分的凝胶孔体积减小。

2.4 养护气压与湿度对混凝土抗压强度的影响

水泥的水化程度与硬化水泥净浆的孔结构特征都将影响混凝土的宏观性能。不同养护条件下, 混凝土 28 d 抗压强度见图 7。

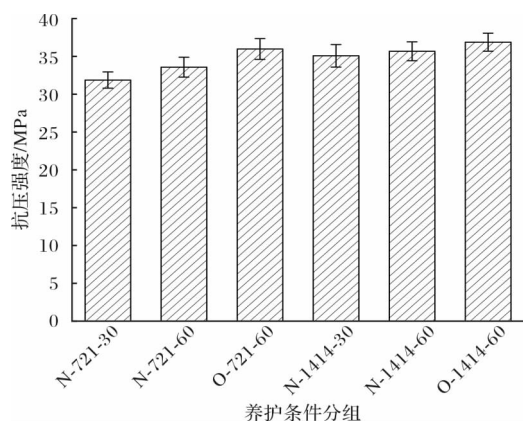


图 7 不同养护条件下混凝土的抗压强度

Fig. 7 Compressive strength of concrete cured in different conditions

从图 7 可见, 浸水养护 7 d 后就转入低压养护的混凝土强度发展不如浸水养护 7 d 后转常压养护的混凝土, N-721-30 和 N-721-60 对比 O-721-60 强度分别降低 11.4% 和 6.7%; 也不如浸水养护 14 d 后才转设计养护的混凝土, 后者与 O-721-60 强度基本一致。这也在宏观力学上验证了化学结合水试验与孔结构试验的结果: 同水灰比下, 化学结合水含量越多, 水泥水化越充分, 混凝土强度越高; 凝胶孔比例越大, 毛细孔比例越小, 水化程度越高, 同时其孔级配也对混凝土强度更有

利^[12-13]。对于经过了 14 d 浸水养护的混凝土, 其内部的水泥已经具备了较高的水化程度, 故受后续低压低湿环境的影响较之仅经过 7 d 养护的混凝土要小。另外, 混凝土试验中水灰比为 0.45, 是陈红伟^[14]给出的高原地区 C30 混凝土推荐水灰比, 而图 7 中各组混凝土的强度也都达到了 30 MPa 以上。

3 讨论

试验研究对象为 C30 混凝土的等水灰比净浆, 配合比中没有掺加任何矿物掺合料或化学外加剂。对于强度等级 C50 及以上的混凝土, 若同样不掺矿物掺合料及影响强度发展的外加剂, 则根据工程经验其强度在 7 d 龄期时往往就已经基本达到设计值, 后续的增长空间很小。另外, 对于普通公路工程来说 C50 及以上的混凝土大部分用于预制梁, 7 d 龄期内一般采取喷淋或蒸汽的方式对构件持续补水, 相当于本试验中的浸水养护, 养护效果较好。因此, 后续自然养护过程中的气压和湿度条件对强度等级 C50 及以上的混凝土的影响相较本试验研究的 C30 混凝土要小, 基本不会影响施工进度与质量。

对于强度等级相对较低的混凝土(如试验研究的 C30), 其强度在 7 d 龄期后还有一定的增长空间, 故后续(自然)养护的条件对其更为重要。同样地, 对于掺加了粉煤灰或粒化高炉矿渣粉的混凝土, 粉煤灰与粒化高炉矿渣粉需要与水泥熟料水化产生的 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 进行二次水化, 在水化进程上滞后于普通硅酸盐水泥。因此, 养护气压与湿度对掺加粉煤灰或矿渣粉的混凝土而言, 比对本试验研究的混凝土更加重要。

在本试验研究中, 水泥净浆与混凝土均在处于 $20 \pm 1^\circ\text{C}$ 的恒温室内的密闭装置中养护, 内部空气基本不流动。而在真实的高原低气压地区, 年均气温较低且风速往往较大, 自然养护过程中混凝土构件所暴露的环境相较本试验研究所模拟的更为恶劣。

4 结论

(1) 对于同样的相对湿度, 低压养护的水泥净浆的化学结合水比常压养护的水泥净浆少, 凝胶孔发展也不如常压养护下充分, 即水化进程有一定程度的滞后。

(2) 在经历 7 d 以上浸水养护且后续自然养护的相对湿度达到 60% 的条件下, 气压对 28 d 水泥

净浆中的毛细孔分布影响不大。但是, 当后续自然养护的相对湿度低至 30% 时, 28 d 水泥净浆中毛细孔不能被很好地填充。

(3) 试验条件下经历 7 d 标准养护并自然养护至 28 d 的混凝土均能达到设计强度等级, 但当自然养护的气压低至 61 kPa 且相对湿度低至 30% 时, 强度富余非常有限。

(4) 在高原低气压环境下施工的混凝土工程, 为确保其力学性能发展达到设计要求, 宜加强养护, 可适当延长洒水保湿养护龄期。尤其在当地相对湿度低于 30% 时, 建议延长洒水保湿养护龄期至 14 d。

参考文献 References

- [1] 马新飞. 低压低湿养护对混凝土性能影响的研究[D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2016.
MA Xinfei. Effect of low humidity and low atmospheric pressure on the properties of concrete[D]. Harbin: Harbin Institute of Technology, 2016.
- [2] 葛昕. 高原气候条件对混凝土性能及开裂机制影响的研究[D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2019.
GE Xin. The research on effect of plateau climatic conditions on concrete performance and cracking mechanism [D]. Harbin: Harbin Institute of Technology, 2019.
- [3] 胡玉兵, 曹瑞普. 高原地区混凝土内外结构性能的差异性研究[J]. 硅酸盐通报, 2017, 36(S1): 213-218.
HU Yubing, CAO Ruipu. Differences of internal and external structure properties of concrete in the plateau area [J]. Bulletin of the Chinese Ceramic Society, 2017, 36(S1): 213-218.
- [4] 葛昕, 葛勇, 杜渊博, 等. 高原气候条件下混凝土力学性能的研究[J]. 混凝土, 2020(3): 1-4, 8.
GE Xin, GE Yong, DU Yuanbo, et al. Mechanical properties of concrete under plateau climate condition [J]. Concrete, 2020(3): 1-4, 8.
- [5] GE X, GE Y, LI Q, et al. Effect of low air pressure on the durability of concrete [J]. Construction and Building Materials, 2018, 187: 830-838.
- [6] GE X, GE Y, DU Y, et al. Effect of low air pressure on mechanical properties and shrinkage of concrete[J]. Magazine of Concrete Research, 2018, 70(18): 919-927.
- [7] ZHANG A, YANG W, GE Y, et al. Effect of nano-materials on the mechanical properties and microstructure of cement mortar under low air pressure curing [J]. Construction and Building Materials, 2020, 249: 11878.
- [8] 纳启财. 高原地区环境及养护条件对混凝土性能的影响[J]. 混凝土与水泥制品, 2016(1): 10-13.
NA Qicai. Effect of environment and curing conditions of plateau regions on concrete properties [J]. China Concrete and Cement Products, 2016(1): 10-13.
- [9] 何锐, 王铜, 陈华鑫, 等. 青藏高原气候环境对混凝土强度和抗渗性的影响[J]. 中国公路学报, 2020, 33(7): 29-41.
HE Rui, WANG Tong, CHEN Huaxin, et al. Impact of Qinghai-Tibet Plateau's climate on the strength and permeability of concrete[J]. China Journal of Highway and Transport, 2020, 33(7): 29-41.
- [10] 陈华鑫, 王铜, 何锐, 等. 高原复杂气候环境对混凝土气孔结构与力学性能的影响[J]. 长安大学学报(自然科学版), 2020, 40(2): 30-37.
CHEN Huaxin, WANG Tong, HE Rui, et al. Effects of complex climatic environment on pore structure and mechanical properties of concrete[J]. Journal of Chang'an University (Natural Science Edition), 2020, 40(2): 30-37.
- [11] MINDESS S, YOUNG J F, DARWIN D. Concrete [M]. 2nd ed. Upper Saddle River, New Jersey: Pearson Education, Inc., 2003.
- [12] 吴中伟, 廉慧珍. 高性能混凝土[M]. 北京: 中国铁道出版社, 1999: 38-43.
WU Zhongwei, LIAN Huizhen. High performance concrete [M]. Beijing: China Railway Publishing House Co., Ltd., 1999: 38-43.
- [13] 吴中伟. 混凝土科学技术近期发展方向的探讨[J]. 硅酸盐学报, 1979, 7(3): 262-270.
WU Zhongwei. An approach to the recent trends of concrete science and technology[J]. Journal of the Chinese Ceramic Society, 1979, 7(3): 262-270.
- [14] 陈红伟, 胡玉兵, 张云必. 高原环境下混凝土配合比优化设计研究 [J]. 硅酸盐通报, 2016, 35(8): 2681-2687.
CHEN Hongwei, HU Yubing, ZHANG Yunbi. Mixture optimization design of concrete in the environment of plateau[J]. Bulletin of the Chinese Ceramic Society, 2016, 35(8): 2681-2687.

(编辑 桂智刚)