

# THESE DE DOCTORAT

NANTES UNIVERSITE

ECOLE DOCTORALE N° 602

Sciences de l'Ingénierie et des Systèmes

Spécialité : « Génie Civil et Matériaux »

Par

**Tarek IHADDADENE**

**Étude multi-échelle des propriétés de transport dans les matériaux cimentaires : Contribution de l'approche atomistique par dynamique moléculaire**

Thèse présentée et soutenue à Saint-Nazaire, Nantes Université, le « date »

Unité de recherche : GEM- Institut de recherche en génie civil et mécanique-UMR CNRS 6183

## Rapporteurs avant soutenance :

Siham KAMALI-BERNARD  
Ali ZAOU

Professeur des Universités, INSA Rennes  
Professeur des Universités, Université de Lille

## Composition du Jury :

Président :

Examineurs :

Tulio HONORIO DE FARIA  
Andrey KALINICHEV

Professeur des universités, ENS Paris Saclay  
Directeur de recherche, IMT Atlantique

Directeur de thèse :  
Encadrants de thèse :

Ouali AMIRI  
Jérôme CLAVERIE  
François BIGNONNET

Professeur des Universités, Nantes Université  
Maître de conférences, Nantes Université  
Maître de conférences, Nantes Université

## Invité(s)

Dimitri DENELEE

Directeur de recherche, Université Gustave Eiffel

**Titre :** Étude multi-échelle des propriétés de transport dans les matériaux cimentaires : Contribution de l'approche atomistique par dynamique moléculaire

**Mots clés :** Matériaux cimentaire, diffusion ionique, durabilité, dynamique moléculaire, homogénéisation, modélisation multi-échelle.

**Résumé :** La durabilité des structures en béton armé, notamment en milieux marins, est fortement conditionnée par la pénétration des ions chlorures responsables de la corrosion des armatures métalliques. Selon le modèle de Tuutti, ce processus se déroule en trois phases - incubation, initiation et propagation -, la première étant dominée par la diffusion ionique à travers la matrice cimentaire. La compréhension de cette diffusion, régie par le coefficient effectif  $D_e$ , demeure un enjeu majeur pour la prédiction de la durée de vie des ouvrages exposés à des environnements agressifs. Les modèles multi-échelles de la littérature, basés sur des approches d'homogénéisation, capturent les comportements macroscopiques mais ne tiennent pas compte souvent les phénomènes observés à l'échelle

nanométrique, tels que les effets d'interface associés à la double couche électrique (DCE) et la fixation des ions dans les pores du gel C-S-H. Pour résoudre ce verrou scientifique, une modélisation atomistique des C-S-H et des simulations de dynamique moléculaire ont ainsi été réalisées pour caractériser la diffusion ionique à l'échelle atomique pour différents rapports Ca/Si et différentes tailles des pores de gel. Les profils de coefficient de diffusion ainsi obtenus ont été intégrés dans un modèle d'homogénéisation multi-échelle couplant les différentes échelles de la pâte de ciment et le processus hydratation. Cette approche hiérarchique a permis de prédire avec précision le coefficient de diffusion  $D_e$ , en bon accord avec les résultats expérimentaux disponibles dans la littérature.

**Title:** Multiscale study of transport properties in cementitious materials: Contribution of the atomistic approach through molecular dynamics

**Keywords:** Cementitious materials, ionic diffusion, durability, molecular dynamics, homogenization, multiscale modeling.

**Abstract:** The durability of reinforced concrete structures, particularly in marine environments, is largely governed by the ingress of chloride ions responsible for the corrosion of steel reinforcements. According to Tuutti's model, this degradation process occurs in three stages—incubation, initiation, and propagation—the first being dominated by ionic diffusion through the cementitious matrix. Understanding this diffusion, governed by the effective diffusion coefficient  $D_e$ , remains a key challenge for predicting the service life of structures exposed to aggressive environments. Existing multiscale models based on homogenization approaches capture macroscopic transport behavior but often fail to account for nanoscale phenomena

such as interfacial effects associated with the electrical double layer (EDL) and ion binding within C-S-H gel pores. To address this limitation, an atomistic modeling approach of C-S-H combined with molecular dynamics simulations was developed to characterize ionic diffusion at the atomic scale for various Ca/Si ratios and gel-pore sizes. The resulting diffusion profiles were integrated into a multiscale homogenization framework, coupling the different scales of the cement paste and the hydration process. This hierarchical approach enables accurate prediction of the effective diffusion coefficient  $D_e$  in good agreement with experimental data reported in the literature.