

# THESE DE DOCTORAT

NANTES UNIVERSITE

ECOLE DOCTORALE N° 602  
*Sciences de l'Ingénierie et des Systèmes*  
Spécialité : « *Génie Civil et Matériaux* »

Par

**Tarek IHADDADENE**

**Modélisation multi-échelle de la diffusion ionique dans les matériaux cimentaires : Contribution de l'approche atomistique par dynamique moléculaire**

Thèse présentée et soutenue à Saint-Nazaire, Nantes Université, le 12 décembre 2025  
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

**Titre :** Modélisation multi-échelle de la diffusion ionique dans les matériaux cimentaires : Contribution de l'approche atomistique par dynamique moléculaire

**Mots clés :** matériaux cimentaires, 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 de diffusion effectif de la pâte de ciment, 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 phénomènes microscopiques mais ne tiennent souvent pas compte de ceux 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 de gel de 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 variations spatiales du coefficient de diffusion dans les pores de gels ainsi obtenus et un modèle d'hydratation ont été intégrés dans un modèle d'homogénéisation multi-échelle décrivant la diffusion aux différentes échelles de la pâte de ciment. Le coefficient de diffusion de la pâte de ciment ainsi modélisé est en accord avec les résultats expérimentaux disponibles dans la littérature.

**Title:** Multiscale modeling of ionic diffusion 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 strongly influenced by the ingress of chloride ions, which are responsible for the corrosion of steel reinforcement. According to Tuutti's model, this 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 of the cement paste, remains a major challenge for predicting the service life of structures exposed to aggressive environments. Existing multiscale models in the literature, based on homogenization approaches, capture microscale phenomena but often neglect those occurring at the nanoscale, such as interfacial

effects associated with the electrical double layer (EDL) and ion binding within the C-S-H gel pores. To overcome this scientific limitation, atomistic modeling of C-S-H combined with molecular dynamics simulations has been performed to characterize ionic diffusion at the atomic scale for various Ca/Si ratios and gel pore sizes. The spatially resolved diffusion profiles obtained from these simulations, together with a hydration model, were incorporated into a multiscale homogenization framework describing diffusion across different scales of the cement paste. The predicted diffusion coefficients of the cement paste show good agreement with experimental results reported in the literature.