

Détermination des propriétés nanoscopiques viscolélastiques et diffusives par la Dynamique Moléculaire

Sela Hoeun¹, Frédéric Grondin¹, Ahmed Loukili¹

¹Nantes Université, Ecole Centrale Nantes, CNRS, GeM, UMR 6183, F-44000 Nantes, France

RESUME Les structures du génie urbain sont connues pour absorber la chaleur du rayonnement solaire le jour pour la restituer dans l'environnement la nuit et en période estivale cela entraîne l'apparition d'îlots de chaleur urbains. L'eau contenue dans les structures de chaussée peut, selon la quantité de chaleur emmagasinée, s'évaporer sous forme vapeur et offrir une solution de rafraîchissement. Les structures de chaussée horizontales sont aussi soumises à du fluage, conduisant à une variation locale de la porosité du matériau, ce qui modifie sa capacité à diffuser la vapeur d'eau. Dans le but d'optimiser le pouvoir évaporatif de ces structures, une première approche consiste à modéliser finement les phénomènes. Les données issues de la littérature découplent les phénomènes. Ces données sont trop dépendantes du matériau et des conditions d'essai. Dans ce travail, nous étudions le béton comme élément de chaussée. Une modélisation à l'échelle moléculaire a été réalisée pour définir ses propriétés viscoélastiques et celles de diffusion à la vapeur d'eau. En supposant que le fluage du béton est principalement dû au comportement des silicates de calcium hydratés (CSH), représentant au moins 50 % du volume de la pâte de ciment hydratée durcie, la modélisation a considéré son interaction avec d'autres composants pour définir la déformation viscoélastique par binôme de phases. Les variations d'espacement et d'orientation des composites CSH-autre phase ont été analysées dans différents scénarii, montrant l'effet de la présence de molécules d'eau aux interfaces. De la même manière, les coefficients de diffusivité ont été obtenus pour différents composants de la pâte de ciment. Les résultats ont permis d'établir une base de données des propriétés homogénéisées de ces nano-composites pour de futurs calculs aux échelles supérieures.

Mots-clefs Dynamique Moléculaire, fluage, diffusion, matériaux cimentaires

I. INTRODUCTION

Les infrastructures de génie urbain soulèvent de nombreuses questions quant à leur fonction dans le transport, leur contribution à la résilience urbaine et leur impact sur l'aggravation des îlots de chaleur urbain (ICU). Durant la période estivale, la chaleur relâchée la nuit limite l'évacuation de celle emmagasinée dans les bâtiments, ce qui maintient une température intérieure élevée. Cette situation engendre une utilisation intensive des systèmes de climatisation et contribue à la détérioration de la qualité de l'air. Les structures de chaussée, de nature horizontale, subissent également des charges mécaniques quasi constantes qui provoquent des déformations viscoélastiques des matériaux qui les composent. Ces déformations, assimilables à du fluage, entraînent une modification locale de la porosité du matériau, altérant ainsi sa capacité à diffuser vapeurs d'eau. Les données disponibles dans la littérature dépendent fortement du type de matériau et des conditions d'essai, lesquelles ne reflètent pas un couplage fort entre fluage et

diffusion. Ce travail propose donc de déterminer des propriétés considérées comme intrinsèques. En effet, la matrice cimentaire est un matériau poreux à structure multiéchelle, présentant des propriétés physiques différentes selon les échelles de longueur (Ioannidou, 2020). Par exemple, les silicates de calcium hydratés (C-S-H) constituent le principal composant de la pâte de ciment hydratée durcie (Lau et al., 2018). Dans la modélisation multiéchelle, il est primordial de déterminer en premier lieu les propriétés mécaniques des phases hydratées du ciment. Une méthode permettant d'obtenir ces propriétés consiste à utiliser des tests de nano-indentation (Bekrine et al., 2025; Fu et al., 2018b). Une autre méthode couramment utilisée est la simulation par Dynamique Moléculaire (DM), qui a déjà démontré son intérêt pour la détermination des propriétés de fracture (Hoeun et al., 2023).

Il a été proposé dans ce travail d'effectuer une modélisation à l'échelle moléculaire afin de déterminer les propriétés viscoélastiques nanoscopiques nécessaires au calcul du fluage du béton de chaussée. Parallèlement, des simulations à cette même échelle ont permis d'évaluer les propriétés nanoscopiques régissant la diffusion de vapeur d'eau. Deux supercellules de C-S-H (I) combinés, forment un « composite », et différentes configurations d'espacement ainsi que d'orientations de ces phases ont été étudiées. Les résultats ont permis de constituer une base de données regroupant les propriétés viscoélastiques et de diffusion de vapeur d'eau des composites formés par des binômes de phases de la pâte de ciment. Ces propriétés, considérées comme intrinsèques, peuvent être utilisées pour de futurs calculs aux échelles supérieures. Des essais de fluage ont été réalisés sous une charge constante correspondant à 30 % de la contrainte maximale obtenue lors des essais de traction, conformément aux recommandations expérimentales pour les tests de fluage. Les courbes de déformation en fonction du temps ont été obtenues, permettant de déterminer les complaisances de fluage. En outre, les coefficients moyens de diffusion de vapeur d'eau pourraient être calculés avec le déplacement quadratique moyen MSD (en anglais « Mean Square Displacement »).

II. MATÉRIAUX ET MODÈLES

Le 11 Å tobermorite possède une formule chimique $\text{Ca}_4\text{Si}_6\text{O}_{14}(\text{OH})_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, avec des longueurs de cellule (a, b, c) = (6.69 Å, 7.39 Å, 22.779 Å) et des angles de cellule (α, β, γ) = (90°, 90°, 123.49°) (Hamid, 1981). Sa structure cristalline est monoclinique et appartient au groupe d'espace $P2_1$. (Fu et al., 2018a) ont développé C-S-H (I) avec un rapport Ca/Si de 0,67 à partir de 11 Å tobermorite, en utilisant un processus de recuit. Nous avons appliqué la même méthode et obtenu le C-S-H (I). En fait, nous avons commencé à travailler sur le C-S-H (I) avec le rapport Ca/Si un peu faible pour programmer l'algorithme de calcul et faire dans un premier temps une analyse comparative entre phases de la pâte de ciment. En perspective, nous envisageons de faire une simulation avec le C-S-H (II) avec le rapport de 1.5-2.0 pour prendre en compte des situations plus réelles. Le logiciel de visualisation OVITO a été utilisé pour la visualisation (Stukowski, 2009).

La Dynamique Moléculaire (DM) est une méthode de simulation informatique utilisée pour étudier les trajectoires des atomes et des molécules en résolvant numériquement les équations du mouvement de Newton pour un système de particules en interaction. Le logiciel LAMMPS (Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator) a été utilisé pour effectuer les simulations de

DM. Dans cette simulation, chacun des N atomes ou molécules est traité comme une masse ponctuelle, et les équations du mouvement de Newton sont intégrées afin de calculer leur mouvement (Plimpton, 1995).

Le champ de force ReaxFF (van Duin et al., 2001) peut être appliqué pour modéliser les principales phases du ciment hydraté. Les paramètres ReaxFF utilisés dans cette étude sont détaillés dans (Liu et al., 2012). L'énergie totale du système peut être exprimée comme suit (van Duin et al., 2001):

$$E_{system} = E_{bond} + E_{over} + E_{under} + E_{val} + E_{pen} + E_{tors} + E_{conj} + E_{vdWaals} + E_{Coulomb} \quad (1)$$

où E_{bond} , E_{over} et E_{under} représentent respectivement l'énergie de liaison, la pénalité énergétique liée à la sur-coordination et à la sous-coordination des atomes. E_{val} , E_{pen} , E_{tors} , E_{conj} , $E_{vdWaals}$ et $E_{Coulomb}$ représentent respectivement l'énergie d'angle de valence, de pénalité, de torsion, de conjugaison, de van der Waals, et de Coulomb.

L'une des difficultés dans la modélisation du comportement au fluage des matériaux cimentaires réside dans le choix du modèle de fluage. En effet, selon le modèle choisi, les propriétés viscoélastiques ne sont pas exactement les mêmes, ce qui peut influencer les résultats. Dans ce travail, trois modèles ont été testés afin d'évaluer si l'approche de DM est intrinsèque. Concernant les modèles viscoélastiques, le modèle de Maxwell est représenté par un ressort élastique et un amortisseur visqueux disposés en série, tandis que le modèle de Kelvin-Voigt est constitué d'un ressort élastique et d'un amortisseur visqueux disposés en parallèle. D'autre part, le modèle de Burgers est une combinaison des modèles de Maxwell et de Kelvin-Voigt disposés en série.

La variation de la déformation au cours du temps selon le modèle de Burgers peut s'exprimer comme suit:

$$\varepsilon(t) = \frac{\sigma_0}{E_M} + \frac{\sigma_0}{E_K} \left(1 - e^{-\frac{tE_K}{\eta_K}}\right) + \frac{\sigma_0}{\eta_M} t \quad (2)$$

où σ_0 représente l'amplitude de la contrainte imposée au temps t_0 , E_M et η_M désignent respectivement le module de Young et la viscosité de la partie Maxwell, tandis que, E_K et η_K correspondent respectivement au module de Young et à la viscosité de la partie Kelvin-Voigt.

Le coefficient de diffusion est calculé à partir de l'équation d'Einstein :

$$D = \frac{1}{2d} \lim_{\tau \rightarrow \infty} \left(\frac{MSD}{\tau} \right) \quad (3)$$

où d est la dimensionnalité du système ($d = 1$ en une dimension et $d = 3$ en trois dimensions). Le déplacement quadratique moyen (en anglaise Mean Square Displacement, MSD) est calculé comme suit :

$$MSD = \frac{1}{N} \sum_i^N |r_i(t_0 + \tau) - r_i(t_0)|^2 \quad (4)$$

où r_i est le vecteur position de la particule i , N est le nombre de particules dans le bloc, et t_0 désigne le temps initial d'observation donnée de durée τ .

III. MÉTHODE

Les propriétés mécaniques et de fracture du composite C-S-H/portlandite ont été étudiées par (Liang, 2020). Les cellules unitaires de C-S-H et de portlandite ont été étendues selon les directions x , y et z . Des supercellules ont ensuite été relaxées en utilisant l'ensemble NPT à une pression de 0 Pa et une température de 300 K dans les directions x , y et z . Après cette relaxation, les supercellules ont été assemblées avec un espace d'interface d'environ 3 Å. Ce composite a ensuite été relaxé une nouvelle fois en utilisant l'ensemble NPT. Bien que similaire à l'étude de (Liang, 2020), les tests de fluage ont été investigués dans cette étude. La cellule unitaire de C-S-H (I) a été étendue en dimensions $7 \times 8 \times 2$ selon les directions x , y et z , respectivement. Dans notre étude, nous avons essayé d'avoir à peu près les mêmes dimensions transversales pour les deux phases composite en multipliant la cellule unitaire correspondante, mais elles ne sont pas exactement identiques. La supercellule de C-S-H (I) a ensuite été transformée de structures monoclinique en supercellules orthogonales afin d'obtenir des résultats indépendants pour chaque direction. Les simulations de Dynamique Moléculaire ont été réalisées en utilisant le champ de force ReaxFF avec des unités réelles en trois dimensions (3D). Une condition aux limites périodique (PPP) a été appliquée pour éliminer les effets de bord. Les supercellules ont été relaxées à une température de 300 K et une pression de 0 atm en utilisant l'ensemble NPT dans les directions x , y et z pendant 50 ps. (Bonnaud et al., 2016) ont étudié trois orientations différentes de paires de particules C-S-H afin d'examiner le potentiel grand d'interaction au niveau moléculaire. Ces orientations ont été sélectionnées pour prendre en compte l'effet d'anisotropie dans la géométrie et la cristallographie des particules de C-S-H. De plus, les forces d'interaction entre particules peuvent être influencées par ces orientations. Dans cette étude, trois orientations différentes ont été choisies, similaires à celles de (Bonnaud et al., 2016). Premièrement, la supercellule de C-S-H (I) a été positionnée au-dessus d'une autre supercellule de C-S-H (I) dans la direction z . Deuxièmement, une supercellule de C-S-H (I) a été placée à côté d'une autre supercellule de C-S-H (I) dans la direction y . Enfin, la supercellule de C-S-H (I) a été tournée de 90° dans le sens antihoraire autour de l'axe x , puis placée à côté d'une autre supercellule de C-S-H (I) dans la direction y . Dans ce dernier cas, le bas de la supercellule de C-S-H (I) a été placé à côté de la supercellule de C-S-H (I). Ces orientations sont illustrées dans la Fig. 1.

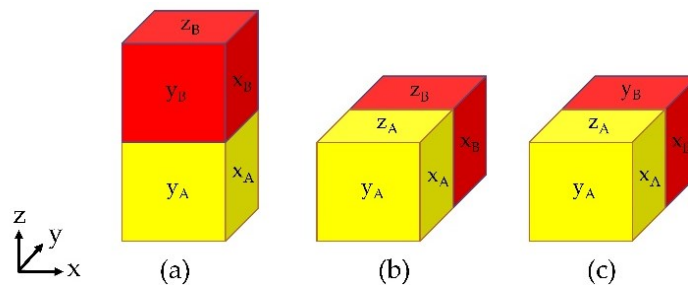


FIGURE 1. Orientations du composite : (a) supercellule-B au-dessus de la supercellule-A dans la direction z , (b) supercellule-B à côté de la supercellule-A dans la direction y , et (c) supercellule-B tournée de 90° dans le sens antihoraire autour de l'axe x , placée à côté de la supercellule-A dans la direction y .

De plus, une couche d'eau interfaciale de 3.1 Å a été introduite à l'interface du composite C-S-H (I) relaxé, comme illustré dans la Fig. 2a. Cette couche d'eau interfaciale a été utilisée pour simuler

des interfaces avec porosité, remplie par le modèle d'eau SPC/E utilisé dans (Zhu et al., 2022). (Bažant, 1972) ainsi que (Tamtsia and Beaudoin, 2000) ont mentionné qu'après séchage, il subsiste une épaisseur d'un ou deux molécules d'eau seulement aux contacts particule-particule du C-S-H. Par conséquent, nous avons introduit une couche d'eau de 3,1 Å (correspondant à une molécule d'eau) et une couche de vide de 1 Å (après séchage). Une couche d'eau de 6,2 Å (correspondant à deux molécules d'eau) sera également étudiée. Le composite C-S-H (I) a ensuite été relaxé à nouveau en utilisant l'ensemble NPT pendant 50 ps supplémentaires. Ces simulations ont été réalisées avec un pas de temps de 0.25 fs.

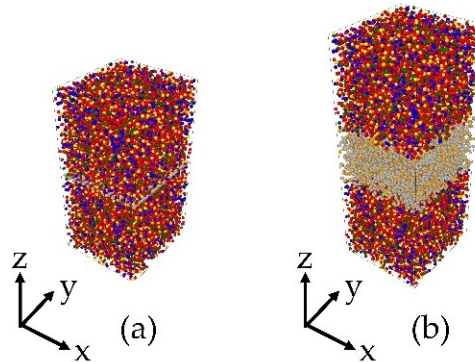


FIGURE 2. Composite C-S-H (I) avec des couches d'eau interfaciales de (a) 3.1 Å et (b) 31 Å.
Phase C-S-H (I) : boules vertes = atomes de Ca, boules jaunes = atomes de Si, boules rouges = atomes d'O, boules bleues = atomes de H. Eau : boules orange = atomes d'O, boules argentées = atomes de H.

Les essais de fluage ont été réalisés sous une charge constante correspondant à 30 % de la contrainte maximale obtenue lors des essais de traction. La charge a été appliquée selon les directions y ou z, couplée à une relaxation dans les directions latérales. Les courbes de déformation en fonction du temps ont ensuite été obtenues. En ajustant ces courbes avec le modèle de Burgers à l'aide de l'Eq. 2, il a été possible de déterminer le module de Young ainsi que les paramètres de viscosité des parties Maxwell et Kelvin-Voigt.

La détermination du coefficient de diffusion suit la même procédure que les essais de fluage, avec les modifications suivantes. Les supercellules de C-S-H (I) et d'eau ont été relaxées séparément à une température de 300 K en utilisant l'ensemble NVT pendant 50 ps. Concernant la diffusion, nous avons choisi, d'après (Yang et al., 2023), une épaisseur d'environ 30 Å. Une couche d'eau interfaciale de 31 Å a été introduite à l'interface du composite C-S-H (I) relaxé, comme montré dans la Fig. 2b. Le composite C-S-H (I) a ensuite été relaxé à nouveau en utilisant l'ensemble NVT pendant 500 ps supplémentaires. Les simulations de production ont été réalisées pendant 500 ps en ensemble NVT afin de calculer le déplacement quadratique moyen (MSD) du composite C-S-H (I). Le bloc pour calculer le MSD est divisé en plusieurs parties : la partie inférieure de C-S-H (I), une couche d'eau interfaciale de 31 Å, la partie supérieure de C-S-H (I), le composite entier, ainsi que 20 segments égaux (chacun représentant 5 % de la longueur totale du composite). En utilisant l'Eq. 3, le coefficient de diffusion peut être obtenu.

Pour réaliser les simulations sur le composite C-S-H (I), 48 cœurs de processeur ont été utilisés. Les simulations ont été effectuées sur le centre de calcul GLiCID, composé de 48 nœuds de calcul

(chacun équipé de 2 processeurs AMD EPYC Genoa 9474F 48 cœurs, avec 384 Go ou 768 Go de mémoire DDR5 à 4800 MT/s).

IV. RÉSULTATS ET DISCUSSION

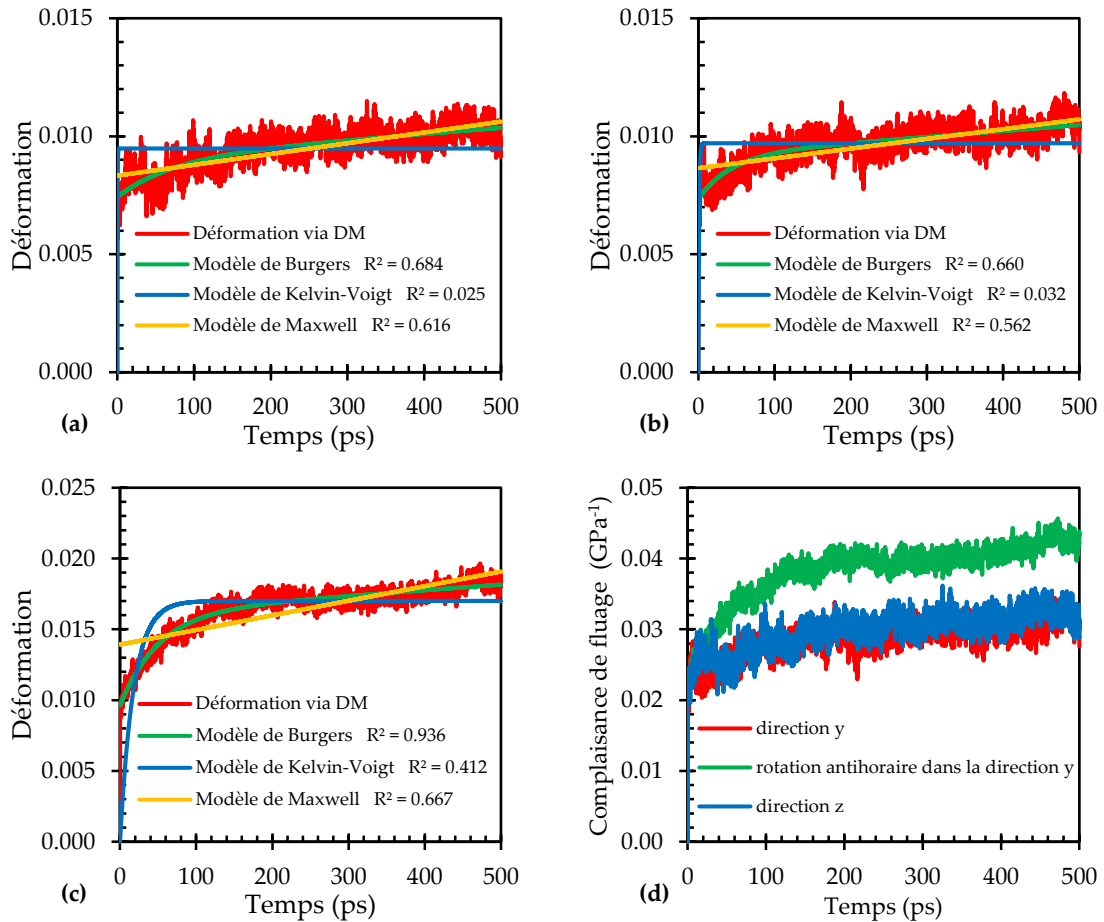


FIGURE 3. Courbes de déformation en fonction du temps du composite C-S-H (I)/eau (3.1 Å)/C-S-H (I) selon différentes orientations : (a) direction z, (b) direction y, (c) rotation antihoraire dans la direction y, et (d) complaisance de fluage.

Tout d'abord, la résistance à la traction de chaque composite a été calculée. Dans l'orientation selon la direction z, la résistance est de 1.07 GPa. Dans l'orientation selon la direction y, la résistance est de 1.13 GPa. Lorsque la supercellule est tournée dans le sens antihoraire autour de la direction y, la résistance augmente à 1.43 GPa. La Fig. 3 montre les courbes de déformation en fonction du temps pour le composite C-S-H (I)/eau (3.1 Å)/C-S-H (I) selon différentes orientations. Trois modèles viscoélastiques ont été utilisés pour ajuster ces courbes, à savoir les modèles de Maxwell, Kelvin-Voigt et Burgers. Comme on peut le constater, les coefficients de détermination du modèle de Burgers sont les plus élevés comparés aux autres modèles, ce qui indique que le modèle de Burgers représente mieux que les autres modèles le comportement au fluage du composite C-S-H

(I). Les orientations influencent également les courbes de déformation en fonction du temps. L'orientation où la supercellule de C-S-H (I) est tournée de 90° dans le sens antihoraire autour de l'axe x et placée à côté d'une autre supercellule de C-S-H (I) dans la direction y présente la déformation la plus élevée par rapport aux autres orientations. Cela signifie que cette orientation pourrait avoir une interaction plus faible à l'interface en réponse au test de fluage. En revanche, les deux autres orientations présentent des courbes similaires. La Fig. 3d montre la complaisance de fluage selon les différentes orientations.

Après ajustement des courbes à l'aide du modèle de Burgers, le module de Young ainsi que les viscosités des parties de Maxwell et de Kelvin-Voigt ont été obtenus, comme indiqué dans le Tableau 1. Ces paramètres pourraient potentiellement être utilisés comme données d'entrée dans des simulations à plus grande échelle, notamment à l'échelle de la pâte de ciment durcie. Le module de Young E_M peut être comparé à celui obtenu par (Bonnaud et al., 2016), dont la valeur moyenne est de 40.1 GPa. En revanche, E_K pourrait être comparé au module de fluage en contact du C-S-H mesuré par nanoindentation, avec une valeur de 189.2 ± 54.1 GPa (Bekrine et al., 2025).

TABLEAU 1. Paramètres d'ajustement selon le modèle de Burgers pour un espacement de l'eau de 3.1 Å.

Orientation	σ_0 (GPa)	E_K (GPa)	η_K Pa.s	E_M (GPa)	η_M (Pa.s)	Temps d'exécution (hr:min)
direction z	0.32	192.0	14.3	42.8	124.8	26:02
direction y	0.34	183.1	8.0	45.9	133.6	27:10
rotation antihoraire dans la direction y	0.43	65.7	3.3	44.7	108.6	27:38

Les coefficients de diffusion selon différentes orientations sont présentés dans la Fig. 4. Ces coefficients sont répartis en deux groupes : en une dimension (D_x, D_y, D_z) et en trois dimensions (D_{xyz}). Le composite est divisé en 20 segments, chacun représentant 5 % de la hauteur totale, de la base jusqu'au sommet. Dans la majorité des cas, les coefficients de diffusion atteignent leur valeur maximale à proximité de l'interface entre l'eau et le C-S-H (I). En raison du confinement de l'eau entre les couches de C-S-H (I), les valeurs de D_z et D_y mesurées au long de la direction du composite sont les plus faibles comparées aux autres directions. Dans la Fig. 4d, les courbes supérieures correspondent au MSD_{xyz} de la couche d'eau interfaciale de 31 Å. Les courbes intermédiaires représentent le MSD_{xyz} de l'ensemble du composite. Enfin, les courbes inférieures montrent les MSD_{xyz} du C-S-H (I) en bas et en haut du composite.

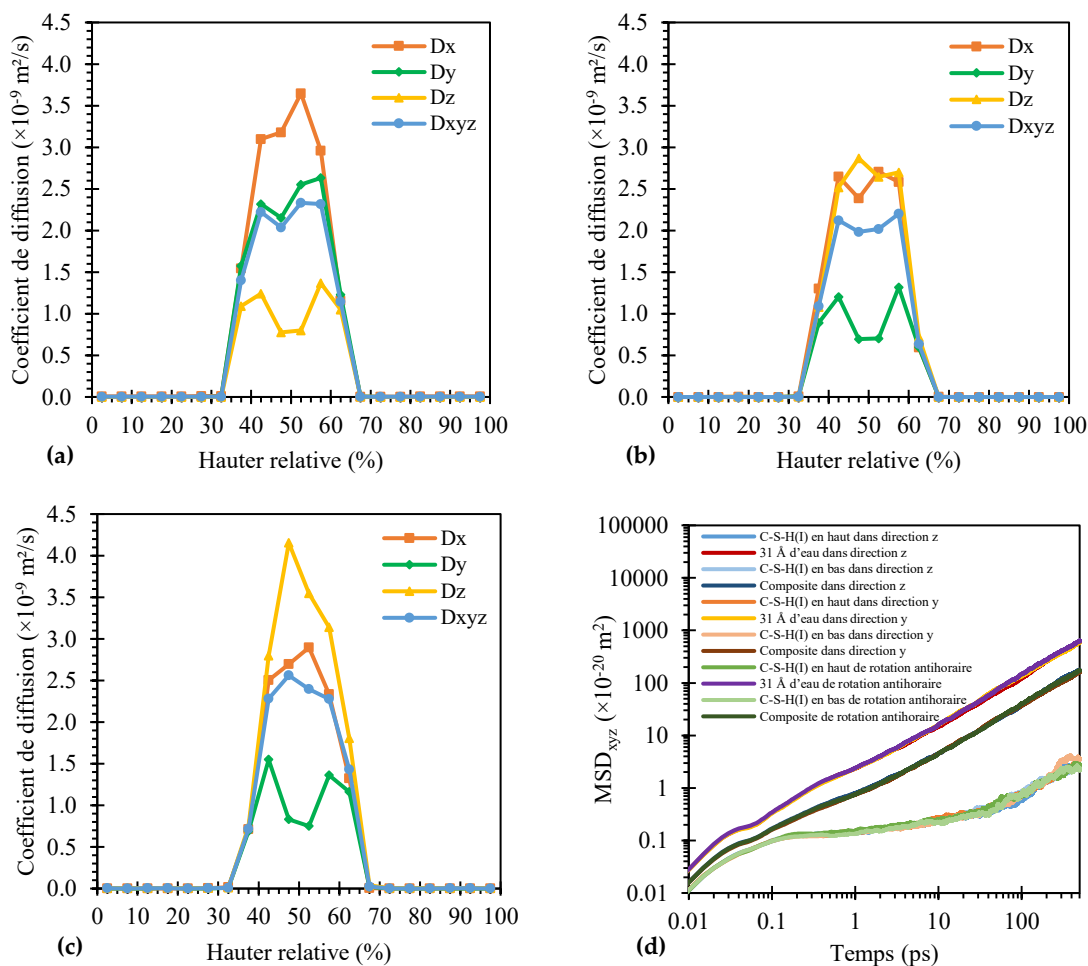


FIGURE 4. Coefficients de diffusion du composite C-S-H (I)/eau (31 Å)/C-S-H (I) selon différentes orientations : (a) direction z, (b) direction y, (c) rotation antihoraire dans la direction y, et (d) MSD_{xyz}.

Le Tableau 2 présente les coefficients de diffusion moyens du composite C-S-H (I). Les coefficients de diffusion du C-S-H (I) en bas et en haut sont très faibles comparés à celui de l'eau interfaciale avec un espacement de 31 Å. Le coefficient de diffusion de l'eau peut être comparé aux résultats obtenus par (Honorio et al., 2022), avec une valeur de $2.02 \pm 0.19 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$.

TABLEAU 2. Coefficients de diffusion moyens en $10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ du composite C-S-H (I)/eau (31 Å)/C-S-H (I).

Orientation	C-S-H (I) en bas	31 Å d'eau	C-S-H (I) en haut	Composite	Temps d'exécution (hr:min)
direction z	0.010	2.020	0.008	0.607	82:16
direction y	0.011	1.905	0.014	0.524	66:04
rotation antihoraire dans la direction y	0.009	2.074	0.008	0.566	73:14

V. CONCLUSION

En résumé, ces résultats mettent en évidence le potentiel d'utilisation des simulations de Dynamique Moléculaire pour étudier les propriétés de fluage et de diffusion de la principale phase hydratée du ciment. Dans cette étude, la combinaison des phases hydratées du ciment est désignée par le terme « composite ». Différentes configurations d'espacement et d'orientations ont été analysées. Les orientations étudiées comprennent : (a) la phase C-S-H (I) placée au-dessus d'une autre phase C-S-H (I) selon la direction z , (b) la phase C-S-H (I) placée à côté d'une autre dans la direction y , et (c) la phase C-S-H (I) tournée dans le sens antihoraire autour de l'axe x , placée à côté d'une autre dans la direction y . Les configurations de couches interfaciales étaient constituées d'une couche d'eau de 3.1 Å pour l'étude du fluage, et de 31 Å pour celle de la diffusion. Ces couches d'eau interfaciale étaient positionnées à l'interface du composite C-S-H (I) relaxé. D'une part, les tests de fluage ont été réalisés sur le composite C-S-H (I). Les résultats ont montré que l'orientation avait un impact sur les courbes de déformation en fonction du temps. Le modèle de Burgers a été utilisé pour ajuster ces courbes. Grâce à de hauts coefficients de détermination, ce modèle s'est avéré capable de bien représenter les courbes obtenues. D'autre part, les coefficients de diffusion ont pu être déterminés, tant pour l'ensemble du composite que pour la couche d'eau. Ces valeurs peuvent être comparées à celles issues de la littérature. Les résultats de fluage seront comparés à des simulations réalisées sur des bi-composites 'secs', i.e. sans eau à l'interface, ou séparés par une lame d'eau importante afin de vérifier l'influence de l'eau interstitielle sur le fluage du béton. Ces résultats pourraient également être utilisés comme paramètres d'entrée pour des simulations à plus grande échelle, notamment à l'échelle microscopique de la pâte de ciment durcie. Ces travaux encouragent l'analyse de ce comportement dans des conditions plus variées et la mise en place de simulations à l'échelle supérieure afin de vérifier si l'eau adsorbée joue effectivement un rôle important, comme le suggèrent de nombreux auteurs. La prochaine étape consistera en une évaluation de la diffusion dans la microstructure sous charge mécanique.

REFERENCES

- Bažant, Z.P., 1972. Thermodynamics of interacting continua with surfaces and creep analysis of concrete structures. *Nuclear Engineering and Design* 20, 477–505. [https://doi.org/10.1016/0029-5493\(72\)90124-0](https://doi.org/10.1016/0029-5493(72)90124-0)
- Bekrine, I., Hilloulin, B., Loukili, A., 2025. Investigation of the creep properties of blended cement pastes using combined nanoindentation and SEM imaging. *Construction and Building Materials* 463, 140103. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2025.140103>
- Bonnaud, P.A., Labbez, C., Miura, R., Suzuki, A., Miyamoto, N., Hatakeyama, N., Miyamoto, A., Vliet, K.J.V., 2016. Interaction grand potential between calcium–silicate–hydrate nanoparticles at the molecular level. *Nanoscale* 8, 4160–4172. <https://doi.org/10.1039/C5NR08142D>
- Fu, J., Bernard, F., Kamali-Bernard, S., 2018a. Assessment of the elastic properties of amorphous calcium silicates hydrates (I) and (II) structures by molecular dynamics simulation. *Molecular Simulation* 44, 285–299. <https://doi.org/10.1080/08927022.2017.1373191>
- Fu, J., Kamali-Bernard, S., Bernard, F., Cornen, M., 2018b. Comparison of mechanical properties of C-S-H and portlandite between nano-indentation experiments and a modeling

approach using various simulation techniques. *Composites Part B: Engineering* 151, 127–138. <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2018.05.043>

Hamid, S.A., 1981. The crystal structure of the 11Å natural tobermorite $\text{Ca}_{2.25}[\text{Si}_3\text{O}_7.5(\text{OH})_{1.5}] \cdot \text{H}_2\text{O}$. *Zeitschrift für Kristallographie - Crystalline Materials* 154, 189–198. <https://doi.org/10.1524/zkri.1981.154.3-4.189>

Hoeun, S., Bernard, F., Grondin, F., Kamali-Bernard, S., Alam, S.Y., 2023. Elastic constants of nano-scale hydrated cement paste composites using reactive molecular dynamics simulations to homogenization of hardened cement paste mechanical properties. *Materials Today Communications* 106671. <https://doi.org/10.1016/j.mtcomm.2023.106671>

Honorio, T., Carasek, H., Cascudo, O., 2022. Water self-diffusion in C-S-H: Effect of confinement and temperature studied by molecular dynamics. *Cement and Concrete Research* 155, 106775. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2022.106775>

Ioannidou, K., 2020. Mesoscale Structure and Mechanics of C-S-H, in: Andreoni, W., Yip, S. (Eds.), *Handbook of Materials Modeling: Applications: Current and Emerging Materials*. Springer International Publishing, Cham, pp. 1–15. https://doi.org/10.1007/978-3-319-50257-1_127-1

Lau, D., Jian, W., Yu, Z., Hui, D., 2018. Nano-engineering of construction materials using molecular dynamics simulations: Prospects and challenges. *Composites Part B: Engineering* 143, 282–291. <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2018.01.014>

Liang, Y., 2020. Mechanical and fracture properties of calcium silicate hydrate and calcium hydroxide composite from reactive molecular dynamics simulations. *Chemical Physics Letters* 761, 138117. <https://doi.org/10.1016/j.cplett.2020.138117>

Liu, L., Jaramillo-Botero, A., Goddard, W.A., Sun, H., 2012. Development of a ReaxFF Reactive Force Field for Ettringite and Study of its Mechanical Failure Modes from Reactive Dynamics Simulations. *J. Phys. Chem. A* 116, 3918–3925. <https://doi.org/10.1021/jp210135j>

Plimpton, S., 1995. Fast Parallel Algorithms for Short-Range Molecular Dynamics. *Journal of Computational Physics* 117, 1–19. <https://doi.org/10.1006/jcph.1995.1039>

Stukowski, A., 2009. Visualization and analysis of atomistic simulation data with OVITO—the Open Visualization Tool. *Modelling Simul. Mater. Sci. Eng.* 18, 015012. <https://doi.org/10.1088/0965-0393/18/1/015012>

Tamtsia, B.T., Beaudoin, J.J., 2000. Basic creep of hardened cement paste A re-examination of the role of water. *Cement and Concrete Research* 30, 1465–1475. [https://doi.org/10.1016/S0008-8846\(00\)00279-9](https://doi.org/10.1016/S0008-8846(00)00279-9)

van Duin, A.C.T., Dasgupta, S., Lorant, F., Goddard, W.A., 2001. ReaxFF: A Reactive Force Field for Hydrocarbons. *J. Phys. Chem. A* 105, 9396–9409. <https://doi.org/10.1021/jp004368u>

Yang, J., Zhao, G., Yin, H., Feng, Y., Zhang, P., 2023. Effects of C-S-H gel surface structure on sodium chloride evaporation crystallization in C-S-H gel nanopores with molecular dynamics analysis. *Applied Surface Science* 639, 158159. <https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2023.158159>

Zhu, X., Zaoui, A., Sekkal, W., 2022. Wettability and work of adhesion of water nanodroplet on (001) surface of cement paste. *Cement and Concrete Research* 159, 106896. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2022.106896>