



UNIVERSITÉ DE LILLE
UFR3S – DEPARTEMENT ODONTOLOGIE

[Année de soutenance : 2026]

N°:

THÈSE POUR LE
DIPLÔME D'ÉTAT DE DOCTEUR EN CHIRURGIE DENTAIRE

Présentée et soutenue publiquement le 12 JUIN 2026

Par Inès, DESREUMAUX

**Mécanismes de dégradation de l'interface dentine - résine
adhésive. Rôle des adhésifs universels dans la durabilité de cette
interface.**

JURY

Président :

Monsieur le Pr ROBBERECHT Lieven

Assesseurs :

Monsieur le Dr LINEZ Marc

Monsieur le Dr PERSON Henry

Monsieur le Dr DE CONINCK Florian



Président de l'Université :	Pr. R. BORDET
Directrice Générale des Services de l'Université :	A.V. CHIRIS FABRE
Doyen UFR3S :	Pr. M. HAZZAN
Directrice des Services d'Appui UFR3S :	A. PACAUD
Vice doyen département facultaire UFR3S-Odontologie :	Pr. C. DELFOSSE
Responsable des Services :	L. KORAÏCHI
Responsable de la Sclolarité :	V MAURIAUCOURT

PERSONNEL ENSEIGNANT DE LA FACULTE

PROFESSEURS DES UNIVERSITES

K. AGOSSA	Parodontologie
P. BOITELLE	Prothèses
T. COLARD	Fonction-Dysfonction, Imagerie, Biomatériaux
C. DELFOSSE	Vice doyen du département UFR3S-Odontologie Odontologie Pédiatrique Responsable du département d'Orthopédie dento-faciale
M. DEHURTEVENT	Co-responsable du département de Prothèses
B. LOUVET	Chirurgie orale (Professeur des universités associé)
T. MARQUILLIER	Odontologie Pédiatrique
L. ROBBERECHT	Responsable du département de Dentisterie Restauratrice Endodontie

MAITRES DE CONFERENCES DES UNIVERSITES

A. BLAIZOT	Prévention, Epidémiologie, Economie de la Santé, Odontologie Légale
F. BOSCHIN	Parodontologie
F. CATHALA	Prévention, Epidémiologie, Economie de la Santé, Odontologie Légale (Maître de conférences des Universités associé)
C. CATTEAU	Responsable du département de Prévention, Epidémiologie, Economie de la Santé, Odontologie Légale.
X. COUTEL	Biologie Orale
A. de BROUCKER	Fonction-Dysfonction, Imagerie, Biomatériaux
C. DENIS	Co-responsable du département de Prothèses
F. DESCAMP	Prothèses
M. DUBAR	Responsable du département de Parodontologie
A. GAMBIEZ	Dentisterie Restauratrice Endodontie
F. GRAUX	Prothèses
M. LINEZ	Dentisterie Restauratrice Endodontie
G. MAYER	Prothèses
L. NAWROCKI	Responsable du département de Chirurgie Orale Chef du Service d'Odontologie A. Caumartin - CHU Lille
C. OLEJNIK	Responsable du département de Biologie Orale
P. OLEKSIK	Dentisterie Restauratrice Endodontie (Maître de conférences des Universités associé)
H. PERSOON	Dentisterie Restauratrice Endodontie (Maître de conférences des Universités associé)
C. PRUVOST	Prévention, Epidémiologie, Economie de la Santé, Odontologie Légale (Maître de conférences des Universités associé)
P. ROCHER	Fonction-Dysfonction, Imagerie, Biomatériaux

M. SAVIGNAT	Responsable du département de Fonction-Dys- fonction, Imagerie, Biomatériaux
T. TRENTESAUX	Responsable du département d'Odontologie Pé- diatrique
J. VANDOMME	Prothèses
R. WAKAM KOUAM	Prothèses

PRATICIEN HOSPITALIER et UNIVERSITAIRE

M. BEDEZ	Biologie Orale
----------	----------------

Réglementation de présentation du mémoire de Thèse

Par délibération en date du 29 octobre 1998, le Conseil de la Faculté de Chirurgie Dentaire de l'Université de Lille a décidé que les opinions émises dans le contenu et les dédicaces des mémoires soutenus devant jury doivent être considérées comme propres à leurs auteurs, et qu'ainsi aucune approbation ni improbation ne leur est donnée.

REMERCIEMENTS

Aux membres du jury

Monsieur le Professeur Lieven ROBBERECHT

Professeur des Universités – Praticien Hospitalier

Section de Réhabilitation Orale

Département de Dentisterie Restauratrice Endodontie

Docteur en Chirurgie Dentaire

Docteur de l'Université de Lille

Habilité à diriger des recherches

Responsable du Département de Dentisterie Restauratrice Endodontie

Monsieur le Docteur Marc LINEZ

Maître de Conférences des Universités – Praticien Hospitalier

Section de Réhabilitation Orale

Département de Dentisterie Restauratrice Endodontie

Docteur en Chirurgie Dentaire

Diplôme d'Études Approfondies Sciences de la Vie et de la Santé

Maîtrise de Sciences de la Vie et de la Santé

Responsable de l'Unité Fonctionnelle de Dentisterie Restauratrice Endodontie

Monsieur le Docteur Henri PERSON

Maitre de conférences associé

Section de Réhabilitation Orale

Département de Dentisterie Restauratrice Endodontie

Docteur en Chirurgie Dentaire

Certificat d'Études Supérieures d'Odontologie Chirurgicale mention Odontologie Chirurgicale

– Université de Lille

Monsieur le Docteur Florian DE CONINCK

Chef de Clinique des Universités – Assistant Hospitalier

Section de Réhabilitation Orale

Département de Dentisterie Restauratrice Endodontie

Docteur en Chirurgie Dentaire

Certificat d'Études Supérieures Odontologie Conservatrice Endodontie – Université Paris Cité

Attestation Universitaire Soins Dentaires sous sédation consciente au MEOPA - Université de
Lille

A mes proches,

Table des abréviations :

DSPP	Sialophosphoprotéine dentinaire
MMP	Métalloprotéinase matricelle
Bis-GMA	Bisphénol-A glycidyl méthacryate
UDMA	Uréthane diméthacrylate
HEMA	Hydroxy-éthyl-méthacrylate
10-MDP	10 méthacryloyloxydécyl dyhydrogène phosphate
M&R	Mordançage et rinçage
SAM	Systèmes auto-mordançants
AM	Automordançant
MEB	Microscopie électronique à balayage
FIB	Faisceau d'ions focalisé
TEGDMA	Triéthylène glycol diméthacrilate
TIMP	Tissue inhibitor of metalloproteinase
DIC	Contraste interférentiel différentiel
HSDE	Estérase salivaire humaine
CE	Cholestérol estérase
PCE	Pseudocholine estérase
ZAG	Zinc-alpha2-glycoprotéine
<i>S. Mutans</i>	Streptococcus Mutans
Bis-HPPP	Bis-hydroxypropoxyphényl propane
TEG	Triéthylène glycol
gtf	Glucosyl transférase
MPa	MégaPascal
NanoDMA	Imagerie nano-dynamique
4-META	4-méthacryloyéthyl trimellitate anhydride
GPDM	Glycérophosphate diméthacrylate
RMT	Résistance à la microtraction
MET	Microscopie électronique à transmission
CBS	Clearfil Universal Quick Bond
SCH	Scotchbond Universal
PBA	Prime and Bond Active
ZBX	ZipBond X
MSE	Mordançage sélectif de l'émail

Sommaire :

Table des abréviations :	13
1 Introduction	16
2 Interface dentine-résine adhésive : une structure complexe	17
2.1 Dentine	17
2.1.1 Composition	17
2.1.2 Structure	18
2.1.2.1 La dentine du manteau	18
2.1.2.2 La dentine circumpulpaire	18
2.1.3 Physiologie	19
2.2 Résines adhésives	21
2.2.1 Composition	21
2.2.2 Structure et physiologie	22
2.3 Formation de la couche hybride et des brides résineuses	22
2.3.1 Préparation de la surface dentaire	23
2.3.2 Infiltration du réseau collagénique / hybridation	23
3 Les différents systèmes adhésifs	25
3.1 Les systèmes mordantage et rinçage (M&R) (figure 11)	25
3.2 Les systèmes automordançants (SAM) (figure 13)	27
3.3 Les adhésifs universels	28
4 Mécanismes de dégradation à l'interface résine adhésive / dent	30
4.1 Dégradation chimique	30
4.1.1 Hydrolyse	31
4.1.1.1 Des polymères résineux	31
4.1.1.2 Des fibrilles de collagène	31
4.1.2 Diffusion et plasticisation par l'eau	32
4.1.3 Solubilisation et lixiviation des monomères résiduels, charges et additifs	33
4.1.4 Nanofuites et gradient hydrique	34
4.2 Dégradation biologique (biodégradation)	37
4.2.1 Dégradation enzymatique de la matrice collagénique	37
4.2.1.1 Par les Métalloprotéases matricielles	37
4.2.1.2 Par les Cathepsines cystéines	42
4.2.2 Dégradation enzymatique de la matrice résineuse	43
4.2.2.1 Par les enzymes salivaires	43
4.2.2.2 Par les enzymes bactériennes	44
4.2.3 Dégradation par les neutrophiles subgingivaux	47
4.3 Dégradation physique	50
4.3.1 Contraction de polymérisation et contraintes résiduelles	50
4.3.2 Fatigue mécanique sous la fonction masticatoire	51
4.3.3 Vieillissement thermique de l'interface collée	53
5 Rôle des adhésifs universels dans la durabilité de l'interface dentine-résine adhésive	57

5.1	Introduction aux adhésifs universels	57
5.1.1	Composition et monomères fonctionnels	57
5.1.2	Classification des adhésifs universels selon leur acidité	58
5.1.3	Place des adhésifs universels en dentisterie adhésive moderne.....	58
5.2	Mécanismes d'adhésion à la dentine.....	59
5.2.1	Formation de la couche hybride	59
5.2.1.1	En mode automordançant	59
5.2.1.2	En mode mordançage et rinçage.....	59
5.2.1.3	Mordançage sélectif de l'émail : un compromis clinique	60
5.2.2	Liaison chimique via le 10-MDP : un pilier de la stabilité	60
5.3	Avantages cliniques et impact des adhésifs universels sur la durabilité de l'interface dentine-résine adhésive.....	62
5.3.1	Performances d'adhésion immédiates à la dentine.....	62
5.3.2	Comportement au vieillissement et stabilité de l'interface	64
5.3.3	Comparaison avec les systèmes adhésifs classiques.....	68
6	Conclusion	70
	Bibliographie :	72
	Table des illustrations :	80
	Table des tableaux :	83

1 Introduction

La dentisterie restauratrice moderne connaît depuis plusieurs décennies une évolution majeure, marquée par la transition progressive vers des approches minimalement invasives et adhésives.

Cette évolution s'est récemment accentuée dans un contexte réglementaire et environnemental plus contraignant, avec la restriction puis l'interdiction progressive de l'utilisation des amalgames dentaires dans plusieurs pays européens depuis janvier 2025 [1]. Cette décision, motivée par des considérations environnementales et sanitaires, renforce la place centrale des restaurations collées à base de résines composites dans la pratique clinique quotidienne.

Dans ce contexte, la fiabilité et la durabilité des systèmes adhésifs deviennent un enjeu fondamental. Si l'adhésion à l'émail repose sur des mécanismes relativement bien maîtrisés, notamment grâce à sa forte minéralisation et à l'efficacité du mordantage acide, l'adhésion à la dentine demeure nettement plus complexe.

La dentine est un tissu vivant, hydraté, hétérogène et riche en composants organiques, ce qui la rend particulièrement sensible aux variations environnementales et aux agressions mécaniques, chimiques et biologiques.

Bien que la dentisterie minimalement invasive tende à privilégier la préservation de l'émail, l'adhésion à la dentine reste incontournable dans de nombreuses situations cliniques, telles que les restaurations profondes, les reprises de restaurations ou les pertes tissulaires étendues. La durabilité de l'interface dentine-résine adhésive conditionne alors directement la longévité des restaurations et leur succès clinique à long terme.

L'interface dentine-résine repose sur la formation de la couche hybride, structure clé résultant de l'infiltration de monomères résineux au sein du réseau collagénique dentinaire. Toutefois, cette interface est intrinsèquement fragile et exposée à divers mécanismes de dégradation. Les phénomènes chimiques, biologiques et physiques interagissent et se potentialisent, conduisant à une altération progressive de la couche hybride et à une diminution des performances adhésives.

Face à ces défis, les systèmes adhésifs ont évolué vers des formulations plus polyvalentes et des protocoles simplifiés. Les adhésifs universels, capables d'être utilisés selon différentes stratégies d'application, représentent une étape récente de cette évolution. Leur conception vise à améliorer la stabilité de l'interface dentine-résine, notamment par l'intégration de monomères fonctionnels capables d'interagir chimiquement avec l'hydroxyapatite dentinaire.

L'objectif de ce travail est d'analyser les mécanismes de formation et de dégradation de l'interface dentine-résine adhésive, en s'appuyant sur les données actuelles de la littérature scientifique, et d'évaluer dans quelle mesure les adhésifs universels peuvent contribuer à améliorer la durabilité de cette interface dans un contexte clinique contemporain.

2 Interface dentine-résine adhésive : une structure complexe

2.1 Dentine

La dentine est un tissu conjonctif minéralisé qui représente la majeure partie de la structure de la dent. Elle entoure la pulpe dentaire, qu'elle protège, et se trouve elle-même recouverte par l'émail au niveau de la couronne et par le cément au niveau de la racine. Moins minéralisée que l'émail, la dentine associe rigidité et élasticité, propriétés qui lui permettent d'absorber et de dissiper les forces masticatoires.

C'est un tissu non vascularisé et caractérisé par la présence d'un réseau dense de tubuli dentinaires. Ces fins conduits renferment les prolongements odontoblastiques issus des cellules pulpaire périphériques, créant une interface directe entre la dentine et la pulpe. Cette particularité morphologique confère à la dentine un rôle à la fois mécanique et sensoriel, puisqu'elle contribue à la transmission des signaux thermiques, mécaniques et chimiques jusqu'à la pulpe.

2.1.1 Composition

Elle est composée :

- d'une phase minérale (70%) ;
- d'une phase organique (20%) ;
- d'eau (10%) [2].

La phase minérale est constituée en majorité de cristaux d'hydroxyapatite (liés au calcium, phosphate, sodium et au magnésium). Elle contient également de l'apatite et du whitlockite. C'est elle qui confère à la dentine sa dureté.

La phase organique est divisée en protéines collagéniques et non collagéniques.

Parmi les protéines collagéniques, on retrouve en grande majorité le collagène de type I qui représente 90% de la phase organique, les 10% restants étant représentés par d'autres types de collagènes dont le type III, V et les protéines non collagéniques [3].

Le collagène forme l'armature de la matrice dentinaire et est support du minéral dentinaire (l'hydroxyapatite).

Parmi les protéines non collagéniques, on retrouve en majorité la famille des SIBLINGs : la sialophosphoprotéine dentinaire (DSPP), la phosphoprotéine matricielle dentinaire, la sialoprotéine osseuse, l'ostéopontine, la phosphoglycoprotéine extracellulaire matricielle.

On trouve également des protéoglycanes associés à des glycosaminoglycanes sulfatés, des glycoprotéines, des facteurs de croissances, des enzymes (dont les Métalloprotéinases Matricielles ou MMPs). Toutes ces protéines ont un rôle dans le processus de minéralisation de la dentine (en régulant positivement ou négativement celle-ci) ainsi que dans le maintien de la structure du collagène.

2.1.2 Structure

Lors de l'éruption, il existe deux types de dentines : la dentine du manteau et la dentine circumpulpaire.

2.1.2.1 La dentine du manteau

La dentine du manteau correspond à la couche la plus externe de la dentine, située en continuité directe avec la jonction amélo-dentinaire. Son épaisseur est d'environ 15 à 30 μm . Il s'agit d'une dentine atubulaire, formée précocement, avant la différenciation terminale des odontoblastes. Sa composition se distingue de celle de la dentine circumpulpaire par une minéralisation plus faible et par une phase organique particulièrement riche en fibres de collagène de type III. Cette organisation spécifique lui confère une certaine capacité à amortir et à dissiper les contraintes mécaniques, notamment les forces occlusales transmises à la dent [2,4].

2.1.2.2 La dentine circumpulpaire

La dentine circumpulpaire a une structure poreuse formée par des milliers de tubules ce qui la rendent perméable. Ces tubules contiennent les prolongements odontoblastiques.

Elle est structurée en trois parties (figures 1 et 2) :

- la dentine intercanaliculaire située entre les tubuli dentinaires. C'est la composante principale de la dentine circumpulpaire, sa part organique est majoritairement composée de collagène de type I ;
- la dentine péricanaliculaire entourant la paroi des tubuli dentinaires. Elle présente une phase minérale plus importante que la dentine intercanaliculaire de par sa proximité immédiate avec les prolongements odontoblastiques et sa phase organique est dépourvue de collagène ;
- la prédentine est située sous la dentine intercanaliculaire (dont elle est l'origine) séparée de celle-ci par le front de minéralisation. Elle est beaucoup moins minéralisée et a une épaisseur de 15 à 20 μm [2].

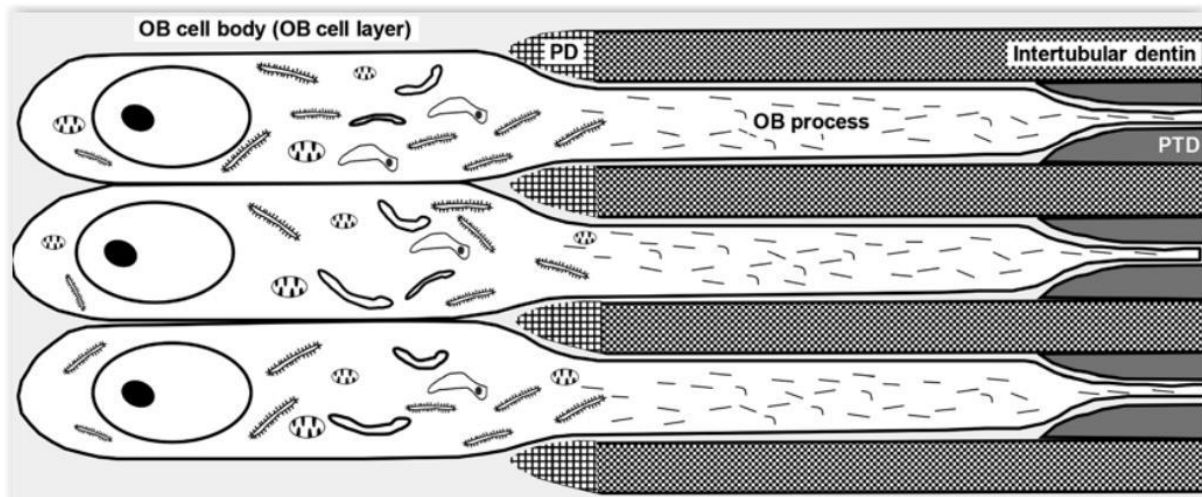


Figure 1 : Schéma d'une coupe de dentine représentant la dentine circumpulpaire. PD : Prédentine, OB : Odontoblastes, PTD : Dentine Péritubulaire [5].

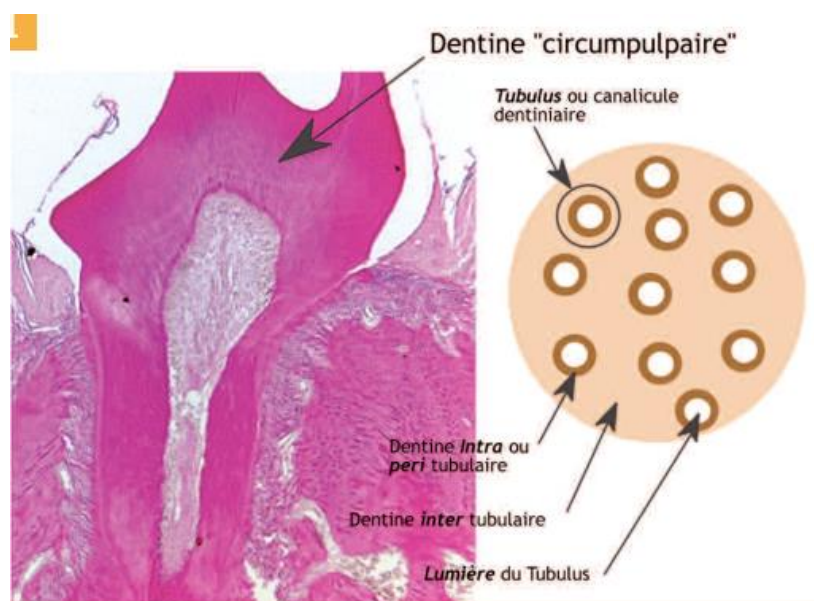


Figure 2 : Schéma d'une coupe de dent représentante la dentine circumpulpaire [3].

2.1.3 Physiologie

Contrairement à l'émail, la dentine est un tissu vivant doté de capacités de remodelage et de réparation. Ceci est permis par la présence des odontoblastes qui forment une couche de cellules autour de la pulpe.

Durant la dentinogénèse, les odontoblastes sécrètent la matrice de la prédentine qui sera progressivement minéralisée par l'apport de composants non collagéniques apportés par les prolongements odontoblastiques. Ces composants (notamment la phosphoprotéine dentinaire) agissent comme agents de nucléation des cristaux d'hydroxyapatite en s'associant avec le collagène de type I et forment la dentine minéralisée.

Contrairement à la plupart des ostéoblastes, les odontoblastes ne finissent pas encapsulés dans la matrice dentinaire, mais continuent de progresser en direction pulpaire, laissant sur leur passage leur prolongement odontoblastique au sein de tubules dentinaires. Ces cellules sont ainsi présentes tout au long de la vie, et sont ainsi capables de s'adapter à leur environnement [6].

Il existe différents types de dentine en fonction de la période et du contexte de sa formation. On parle de dentine primaire pour désigner celle qui est sécrétée avant l'éruption de la dent. Elle se forme à un rythme de 4 à 8 $\mu\text{m}/\text{j}$ [6]. Ensuite, la dentine secondaire est celle qui s'appose physiologiquement et de manière continue après l'éruption de la dent au dépend du volume pulpaire (figure 3). Seul le rythme de formation la diffère par rapport à la dentine primaire puisqu'il est beaucoup plus lent à 0,5 $\mu\text{m}/\text{j}$. Leur composition et structure histologique sont quasiment identiques [6].

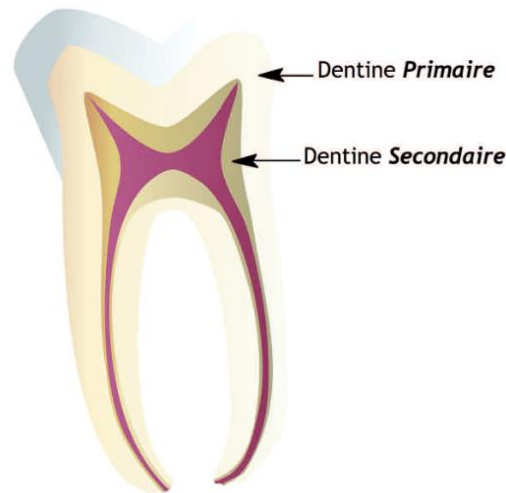


Figure 3 : Schéma d'une coupe de dent représentant la dentine primaire et secondaire [3].

Enfin, la dentine tertiaire est quant à elle formée dans un contexte pathologique, en réaction à agression, ou dans un contexte de vieillissement du tissu. Il en existe là aussi différents types (figure 4).

Tout d'abord, la dentine réactionnelle, sécrétée en réponse à une agression modérée, sans altération de la couche odontoblastique. Les odontoblastes se mettent à sécréter à un rythme plus soutenu. Le calibre des canalicules diminue et la dentine péricanaliculaire augmente [3].

La dentine réparatrice est apposée en cas d'agression sévère avec rupture de la palissade odontoblastique. Les cellules souches pulpaire environnantes se différencient alors en odontoblastes-like et sécrètent dans un premier temps la fibrodentine qui est atubulaire et moins minéralisée que la dentine saine puis l'orthodentine qui contient des tubuli plus espacés et ayant un trajet plus tourmenté que la dentine normale [3].

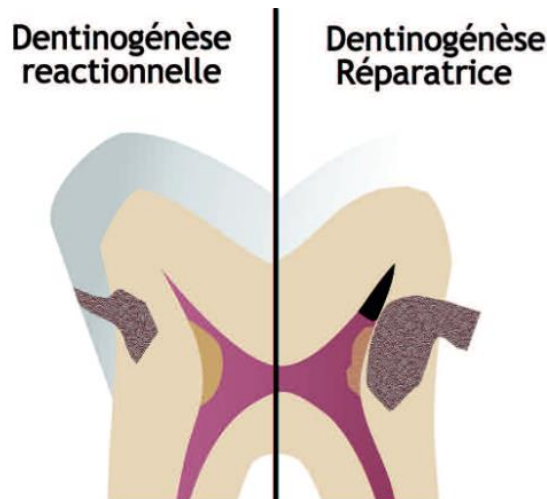


Figure 4 : Schéma d'une coupe de dent représentant la dentine tertiaire (réactionnelle et réparatrice) [3].

2.2 Résines adhésives

2.2.1 Composition

Il existe une multitude de systèmes adhésifs aux propriétés diverses. Leur composition commune est la suivante [7] :

- monomères fonctionnels ;
- monomères ou oligomères de réticulation ;
- solvants (éthanol, acétone, eau) ;
- initiateurs de polymérisation ;
- charges inorganiques.

Les monomères sont les principaux éléments des résines adhésives. Ils permettent l'union avec les résines composites, elles-mêmes composées de monomères méthacrylates. Une copolymérisation a donc lieu entre le composite et l'adhésif. Il en existe deux types.

D'un côté, les monomères ou oligomères de réticulation. Il s'agit de monomères de méthacrylates, notamment le Bisphénol A-glycidyl-Méthacrylate (Bis GMA) et l'urétane-diméthacrylate (UDMA) que l'on retrouve dans la composition des résines composites. Ces monomères présentent un caractère hydrophobe [8].

De l'autre, les monomères fonctionnels, qui présentent un groupement méthacrylate, site de polymérisation et un groupement hydrophile, se liant au collagène ou à l'hydroxyapatite. Autrement dit, il s'agit d'un agent de couplage entre les monomères de la résine adhésive et la surface dentaire. Ces monomères présentent un caractère hydrophile.

Les plus courants sont l'hydroxy-éthyl-méthacrylate (HEMA) ou le 10-Méthacryloyloxydecyl dihydrogen phosphate (10-MDP) [8].

Les résines adhésives sont parfois composées de charges inorganiques afin de renforcer leurs propriétés mécaniques [7].

2.2.2 Structure et physiologie

La polymérisation désigne la réaction chimique permettant l'union de plusieurs monomères en un polymère de masse plus élevée. Elle est composée de plusieurs phases (figure 5) [9] :

- phase d'initiation : décomposition d'un amorceur par un activateur de polymérisation en radicaux libres. Il peut s'agir d'une photopolymérisation ou d'une chémozopolymérisation ;
- phase de propagation : les radicaux libres formés induisent l'ouverture des liaisons vinyliques des monomères et l'élongation du polymère, essentiellement par des liaisons ester ;
- phase de terminaison : fin de la réaction.

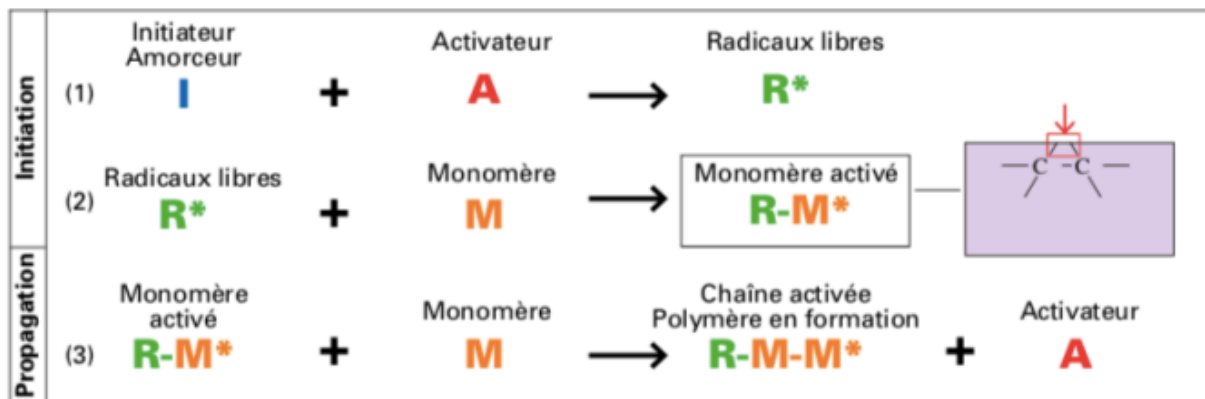


Figure 5 : Schéma illustrant les principales étapes de la polymérisation [10].

La liaison de plusieurs monomères en un polymère s'accompagne d'un retrait volumique du matériau responsable de contraintes de contraction [11]. La nature et la masse des monomères au sein de la chaîne polymérique aura une influence sur la qualité de la polymérisation, le retrait volumique, le degré de conversion et la résistance de l'adhésif [11].

2.3 Formation de la couche hybride et des brides résineuses

La couche hybride est l'interface entre le composite et la dent. Elle résulte du processus d'hybridation de la dentine qui correspond à l'infiltration du réseau collagénique de la dentine par les monomères de résine. Cette couche ainsi formée modifie les propriétés physico-chimiques de la surface dentinaire [12,13].

La mise en place de la couche hybride est possible selon deux protocoles de collage :

- les systèmes mordantage et rinçage (M&R) ;
- les systèmes auto-mordantants (SAM).

Ces deux protocoles se distinguent par la présence ou non de l'étape de rinçage de l'agent de mordantage ainsi que du traitement de la boue dentinaire. Les systèmes adhésifs universels enfin peuvent s'utiliser selon les deux protocoles de collage.

2.3.1 Préparation de la surface dentaire

Historiquement, la formation de la couche hybride se fait en trois étapes.

La première étape correspond à la déminéralisation de la surface dentinaire sur quelques microns permettant un accès au réseau collagénique grâce à un mordantage acide.

L'application d'un agent mordant permet d'une part l'élimination de la boue dentinaire créée suite au fraisage ; et d'autre part la déminéralisation de la couche externe de la dentine, afin de dénuder le réseau de fibres collagéniques.

Une surface rugueuse est ainsi créée (figure 6) [12,14].

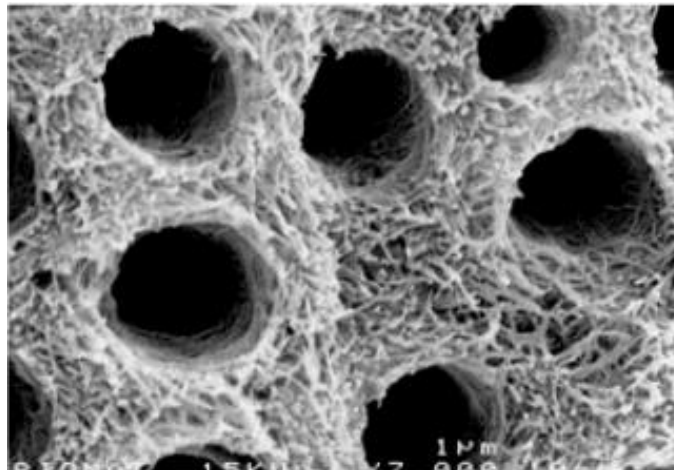


Figure 6 : Aspect de la dentine déminéralisée après rinçage et avant séchage [15].

2.3.2 Infiltration du réseau collagénique / hybridation

Une fois la couche superficielle de la dentine déminéralisée, celle-ci présente deux types de porosités (figure 7) :

- une porosité « naturelle » qui correspond aux tubules dentinaires élargis après déminéralisation ;
- une porosité « thérapeutique » qui correspond à la mise à nu du réseau de fibres de collagène [8,12].

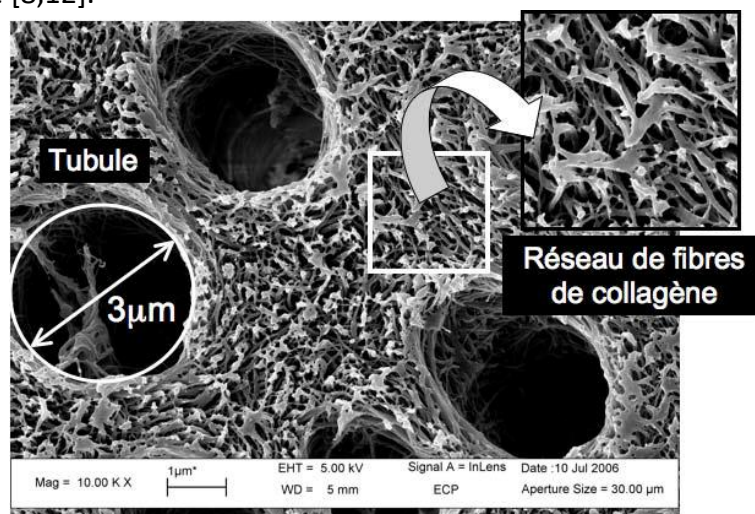


Figure 7 : Image électronique des deux porosités de la dentine déminéralisée [8].

Le réseau de collagène dénudé est alors susceptible de s'effondrer par la formation de liaisons hydrogènes entre ses fibrilles [16] (figure 8).

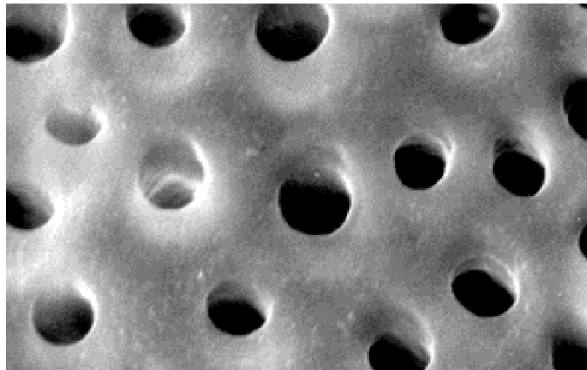


Figure 8 : Aspect de la dentine mordancée après rinçage et séchage. L'eau contenue dans les espaces inter-fibrillaires est évaporée, ce qui conduit au collapsus du collagène [15].

L'application d'un primaire est donc essentielle pour maintenir ce réseau. Il permettra de le maintenir suffisamment poreux mais aussi de le réorganiser si celui-ci a été collapsé lors du séchage [15]. Celui-ci est composé d'eau, de monomères hydrophiles et de solvants organiques. Le monomère principalement utilisé est l'HEMA (hydroxy-éthyl méthacrylate) pour sa capacité à être soluble dans l'eau. Il présente une extrémité hydrophile se liant au réseau collagénique et une extrémité hydrophobe permettant l'infiltration de la résine adhésive dans la dentine déminéralisée [15,17].

Enfin, les monomères de résine adhésive vont pouvoir pénétrer le système poreux. L'interface résine adhésive-dent est ainsi formée d'un côté par une couche hybride qui correspond à l'infiltration du réseau collagénique au sein de la dentine inter- et péritubulaire par la résine adhésive ; et de l'autre par des brides résineuses (tags) qui correspondent à la pénétration de la résine au sein des tubules dentinaires élargis [8,12,13] (figures 9 et 10).

Résine adhésive et dentine sont alors liées par un véritable ancrage micromécanique.

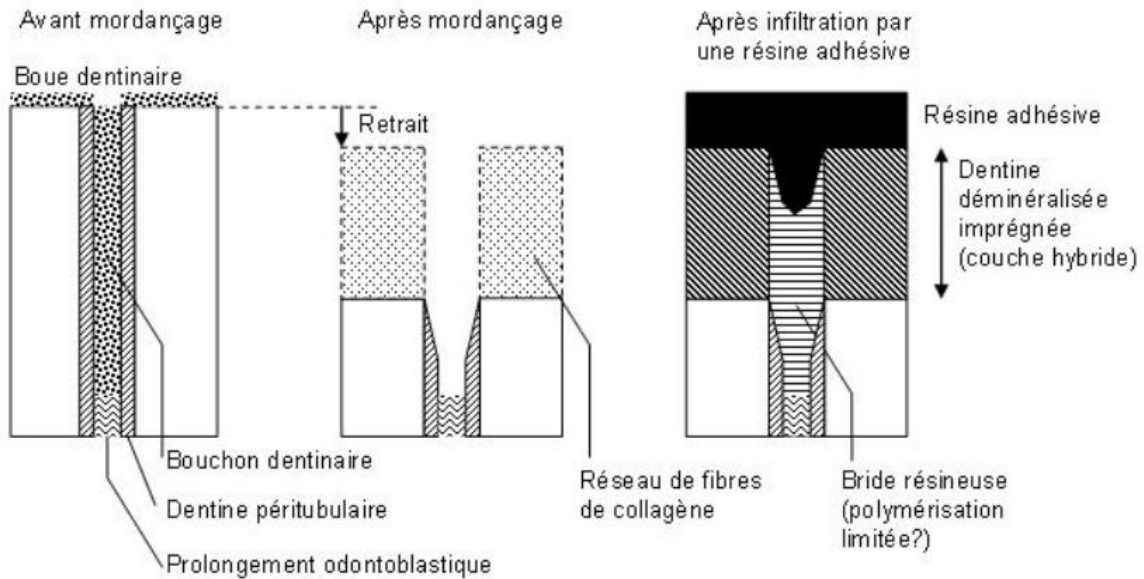


Figure 9 : Illustration schématique de la formation de la couche hybride dans le cas d'un système M&R [8].

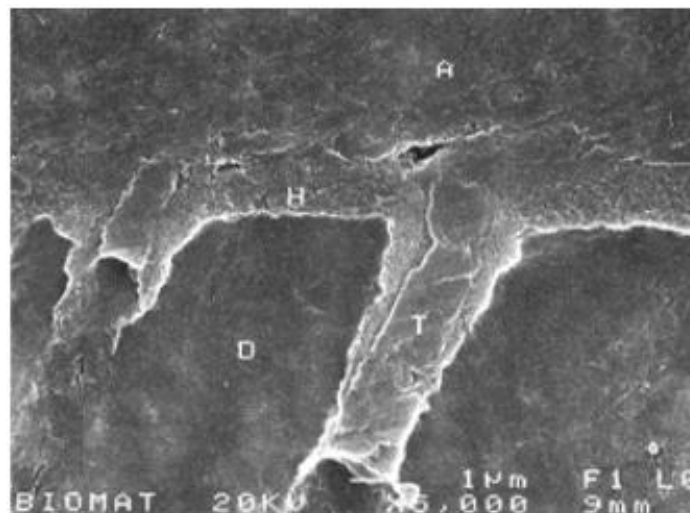


Figure 10 : Interface dentine-adhésif observée en Microscopie électronique à balayage d'un système M&R3. A : Adhésif; H : Couche hybride; D : Dentine; T : Bride d'ancrage [15].

3 Les différents systèmes adhésifs

On distingue plusieurs systèmes adhésifs classés en plusieurs générations en fonction du nombre d'étape au protocole mais aussi en fonction du traitement de la boue dentinaire [15,18].

3.1 Les systèmes mordantage et rinçage (M&R) (figure 11)

Les systèmes de mordantage et rinçage consistent en l'application d'un acide orthophosphorique, suivi d'une étape de rinçage. Celui-ci est appliqué 15 secondes sur la dentine et 30 secondes sur l'émail [15]. Ce système est basé sur l'élimination de la boue dentinaire.

On distingue les systèmes M&R3 en trois étapes, chaque étape constituant un flacon :

- mordantage/rinçage ;
- application d'un primaire ;
- mise en place de l'adhésif.

Il s'agit du système comprenant le plus d'étapes au protocole et par conséquent le plus complexe d'utilisation mais il aboutit aux forces d'adhérence les plus élevées [17].

Et les systèmes M&R2 en deux étapes :

- mordantage/rinçage ;
- application du primaire et de l'adhésif.

Pour ce type de système, le primaire et l'adhésif sont contenus dans le même flacon. Ces systèmes sont plus sensibles à la dégradation hydrolytique de par la différence de polarité entre le primaire (hydrophile) et l'adhésif (hydrophobe) [17].

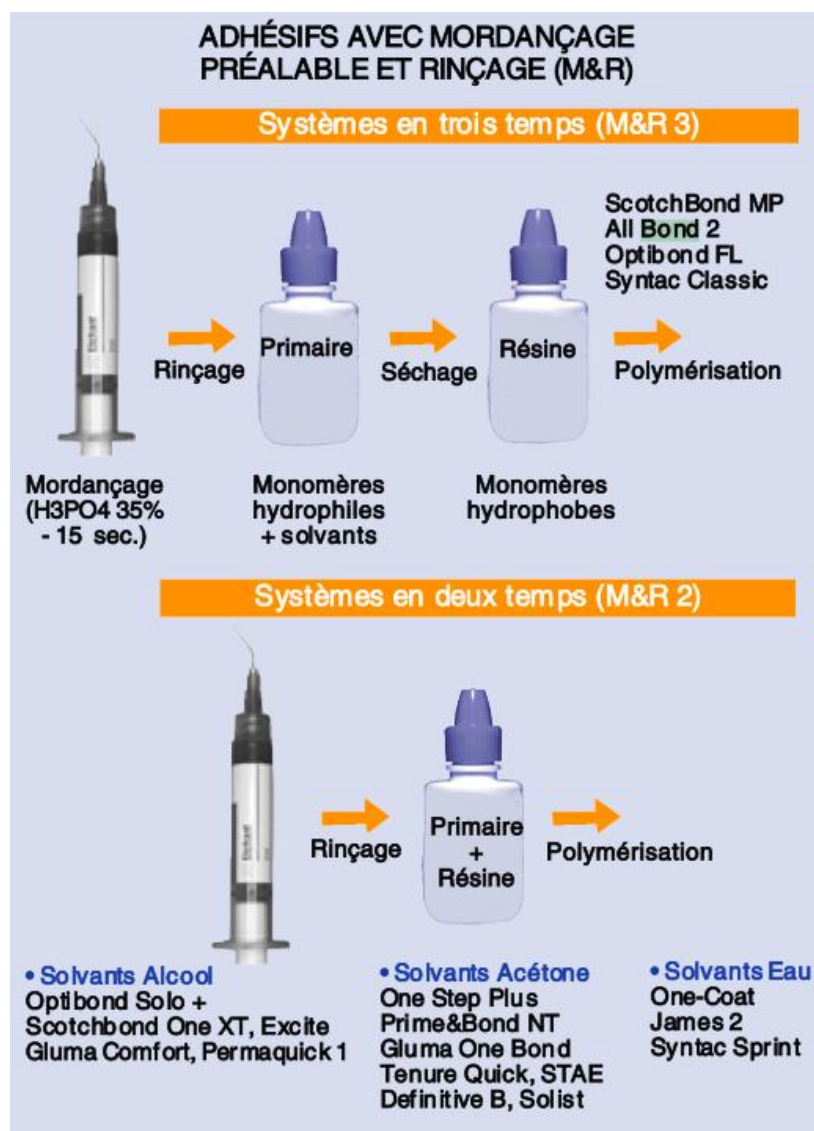


Figure 11 : Schéma synthétisant le protocole de collage des systèmes M&R [15]

3.2 Les systèmes automordançants (SAM) (figure 13)

Pour les systèmes automordançants, l'étape de rinçage est éliminée. Ils contiennent des monomères acides qui déminéralisent et infiltrent la dentine de manière simultanée. Ainsi, l'étape de mordançage et d'application du primaire sont conjointes [15].

Ce système est basé sur la conservation de la boue dentinaire, celle-ci sera infiltrée. La zone hybride contient donc à la fois les protéines de la boue et de la dentine.

On distingue les SAM2 en deux étapes :

- application d'un primaire acide ;
- mise en place de l'adhésif.

Et les SAM1 en une seule étape (figure 12). Ceci permet de simplifier le protocole clinique et ainsi de limiter les erreurs de manipulation. Cependant, la coexistence d'eau, des monomères hydrophobes, hydrophiles, des solvants dans un seul flacon pourra induire des séparations de phase au sein du matériau [15]. De plus, la présence importante d'eau favorise la dégradation hydrolytique au cours du temps [17].

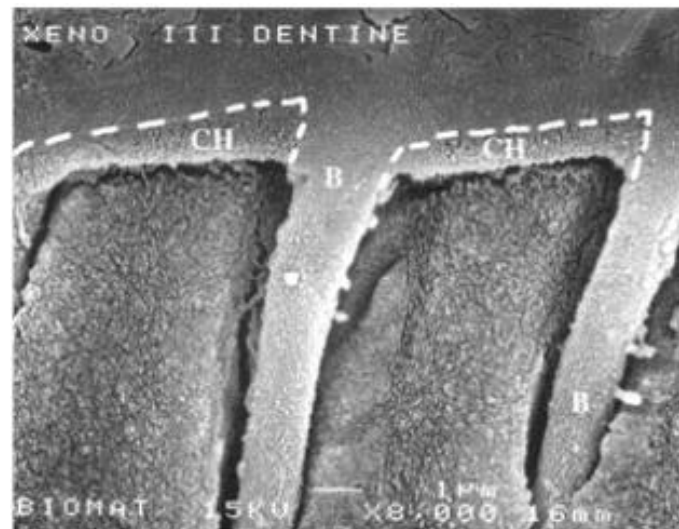


Figure 12 : Interface dentine-adhésif observée en Microscopie électronique à balayage d'un SAM1. CH : Couche hybride ; B : Bride d'ancrage [15].

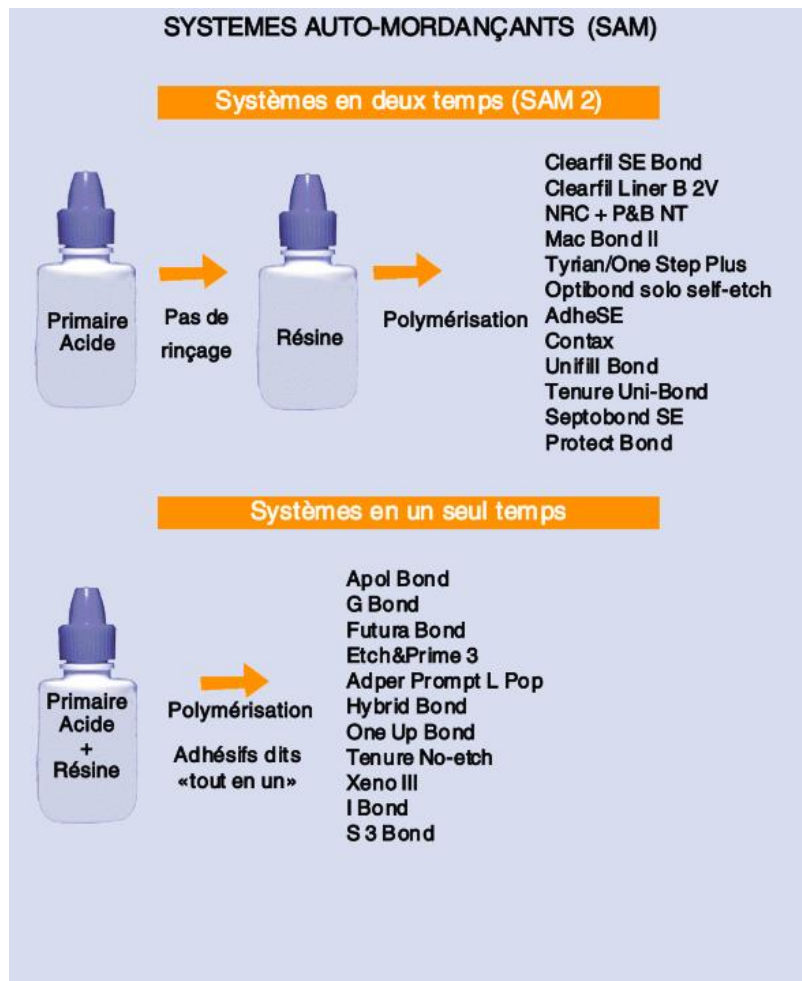


Figure 13 : Schéma synthétisant le protocole de collage des systèmes auto-mordançants [15].

3.3 Les adhésifs universels

Les adhésifs universels sont ainsi nommés car ils peuvent être utilisés selon différentes stratégies opératoires : en mode auto-mordançant (AM), en technique mordançage et rinçage (M&R) ou en mordançage sélectif de l'émail (MSE), ce qui les distingue des systèmes auto-mordançants en une étape (SAM1), qui reposent sur un protocole unique sans étape de mordançage préalable. Cette polyvalence constitue l'un de leurs principaux atouts cliniques et leur confère une plus grande adaptabilité aux situations opératoires.

Comme les SAM1, les adhésifs universels contiennent des monomères acides fonctionnels assurant simultanément le conditionnement et l'infiltration du substrat dentinaire. Toutefois, ils se caractérisent par l'intégration de monomères fonctionnels spécifiques, tels que le 10-MDP (10-Methacryloyloxydecyl Dihydrogen Phosphate), reconnu pour sa capacité à établir des interactions chimiques stables avec l'hydroxyapatite résiduelle. Ce monomère permet non seulement une infiltration micromécanique au sein du réseau collagénique, mais également la formation de sels de calcium MDP relativement insolubles, participant à une liaison chimique plus durable [17,19].

Par ailleurs, la formulation des adhésifs universels est généralement optimisée par rapport aux SAM1, avec une meilleure maîtrise de l'hydrophilie, de la composition en solvants et parfois

l'incorporation de charges nanométriques, ce qui contribue à améliorer leurs propriétés physico-chimiques et leur comportement clinique [20]. Ainsi, bien qu'ils puissent être utilisés selon une approche auto-mordante similaire aux SAM1, les adhésifs universels représentent une évolution plus polyvalente et plus aboutie des systèmes adhésifs contemporains.

La figure 14 résume les différents systèmes adhésifs décrits précédemment ainsi que les différentes étapes du protocole de collage.

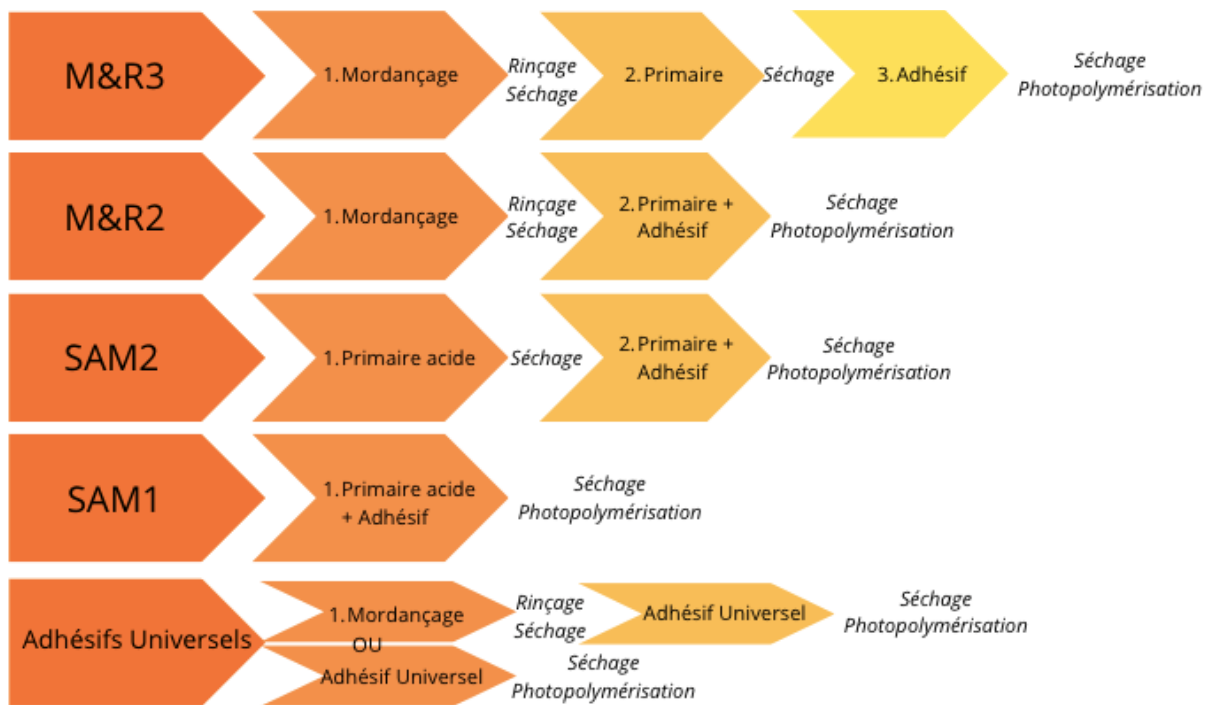


Figure 14 : Récapitulatif des différents systèmes adhésifs

4 Mécanismes de dégradation à l'interface résine adhésive / dent

L'adhésion dentine-résine constitue aujourd'hui un pilier fondamental de la dentisterie restauratrice moderne. La capacité d'une résine adhésive à se lier durablement à la dentine repose sur la formation d'une couche hybride, zone d'interpénétration entre le réseau collagénique déminéralisé et la résine polymérisée. Cette interface joue un rôle central dans la stabilité mécanique, la résistance à la microinfiltration et la durabilité globale des restaurations.

Cependant, malgré les progrès considérables des systèmes adhésifs, l'interface dentine-résine reste un maillon faible dans la longévité des restaurations. Exposée à un environnement buccal complexe, humide et soumis à des sollicitations mécaniques et thermiques répétées, elle subit une dégradation progressive qui compromet sa cohésion et son intégrité. Les mécanismes responsables de cette détérioration sont multiples, souvent interdépendants, et peuvent être classés en trois grandes catégories :

- La dégradation chimique, impliquant principalement l'action de l'eau, l'hydrolyse des polymères et du collagène, la plasticisation, ainsi que la solubilisation et la lixiviation des monomères résiduels et additifs. Ces phénomènes affaiblissent progressivement la couche hybride et favorisent l'apparition de microfissures et de zones poreuses.
- La dégradation biologique (biodégradation), due à l'action d'enzymes endogènes (MMPs, cathepsines) et exogènes (enzymes salivaires et bactériennes), ainsi que des neutrophiles présents dans le fluide gingival. Ces acteurs enzymatiques hydrolysent les composants organiques de l'interface, accélérant la perte de cohésion mécanique et augmentant le risque de micro-infiltrations et de récurrence carieuse.
- La dégradation physique, résultant des contraintes mécaniques et thermiques subies par la restauration. La contraction de polymérisation, la fatigue masticatoire et le vieillissement thermique provoquent des microfissures, des décollements marginaux et des zones vulnérables, préparant le terrain à l'action conjointe des mécanismes chimiques et biologiques.

Comprendre ces processus est essentiel pour optimiser les protocoles adhésifs, améliorer la formulation des résines et développer des stratégies visant à prolonger la durabilité des restaurations. Les sections suivantes détaillent ces différents mécanismes, en mettant en évidence leurs causes, leurs conséquences et les interactions complexes qui compromettent l'intégrité de l'interface dentine-résine.

4.1 Dégradation chimique

La durabilité de l'adhésion dentine-résine repose sur la stabilité chimique de la couche hybride. Or, cette interface est soumise à un environnement humide et dynamique où l'eau joue un rôle central dans la dégradation progressive des composants organiques et polymériques.

Les phénomènes de diffusion d'eau, d'hydrolyse, de plasticisation, de solubilisation et de lixiviation sont étroitement liés et contribuent à l'affaiblissement de la couche hybride. L'eau agit à la fois comme réactif chimique, comme plastifiant du réseau polymérique, et comme vecteur pour la migration des monomères résiduels.

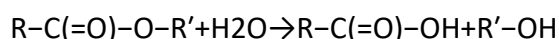
Ainsi, la dégradation chimique apparaît comme un mécanisme complexe, multifactoriel et auto-entretenu, responsable de la diminution de la performance et de la longévité des restaurations adhésives.

4.1.1 Hydrolyse

4.1.1.1 Des polymères résineux

L'hydrolyse est considérée comme le principal facteur de dégradation de la résine au sein de la couche hybride [21].

Après polymérisation, la matrice de résine forme un réseau tridimensionnel en apparence stable. Les monomères méthacrylates sont reliés entre eux principalement par des liaisons ester, or celles-ci sont particulièrement sensibles à l'eau et subissent une hydrolyse selon la réaction :



Cette réaction entraîne la rupture des liaisons ester. La liaison entre la chaîne polymérique et les groupements latéraux se brise et forme des acides carboxyliques et des alcools [22].

La conséquence principale est une fragilisation du réseau polymérique se traduisant par une perte de cohésion de la matrice résineuse. La rupture des liaisons ester réduit la densité réticulaire et provoque un ramollissement de la résine ce qui aboutit à une diminution de la résistance mécanique globale.

Hashimoto et al. (2003) décrivent l'hydrolyse de la résine contenue dans les espaces interfibrillaires au sein de la couche hybride, se caractérisant par une diminution des valeurs d'adhérence dentine/adhésif [23].

Cette fragilisation facilitera l'apparition de microfissures au sein du réseau augmentant la pénétration d'eau et d'enzymes.

Par ailleurs, la nature des monomères et notamment leur caractère plus ou moins hydrophile aura une influence sur leur sensibilité à l'hydrolyse. Les adhésifs de type SAM contiennent une plus grande quantité de monomères hydrophiles, tels que l'HEMA, par rapport aux adhésifs type M&R. Ils absorbent davantage d'eau et subissent donc une hydrolyse plus prononcée, ce qui peut accentuer la dégradation mécanique de l'interface résine/dentine [24].

4.1.1.2 Des fibrilles de collagène

Lors du collage, la phase de mordantage acide entraîne la déminéralisation partielle de la dentine intertubulaire et expose le réseau de fibrilles de collagène. Idéalement, ces fibrilles devraient être entièrement imprégnées par la résine adhésive, formant ainsi la couche

hybride. Cependant, de nombreuses études ont montré que cette imprégnation est rarement complète : des zones de collagène restent partiellement ou totalement non infiltrées par la résine [25]. Ces régions, pauvres en résine et riches en eau, représentent des points de vulnérabilité au sein de l'interface.

En l'absence de protection polymérique, le collagène déminéralisé demeure en contact direct avec l'eau provenant des tubules dentinaires ou du milieu buccal. Cette exposition prolongée conduit à une hydrolyse lente des liaisons peptidiques du collagène. Ce processus provoque progressivement une désorganisation du réseau fibrillaire et une perte de cohésion de la matrice collagénique [16,26].

Hashimoto et al. (2010) ont montré, par microscopie électronique, que les fibrilles non infiltrées présentaient une altération structurale progressive lors d'un vieillissement prolongé en milieu aqueux, confirmant l'existence d'une dégradation hydrique indépendante de toute activité enzymatique [25] (figure 15).

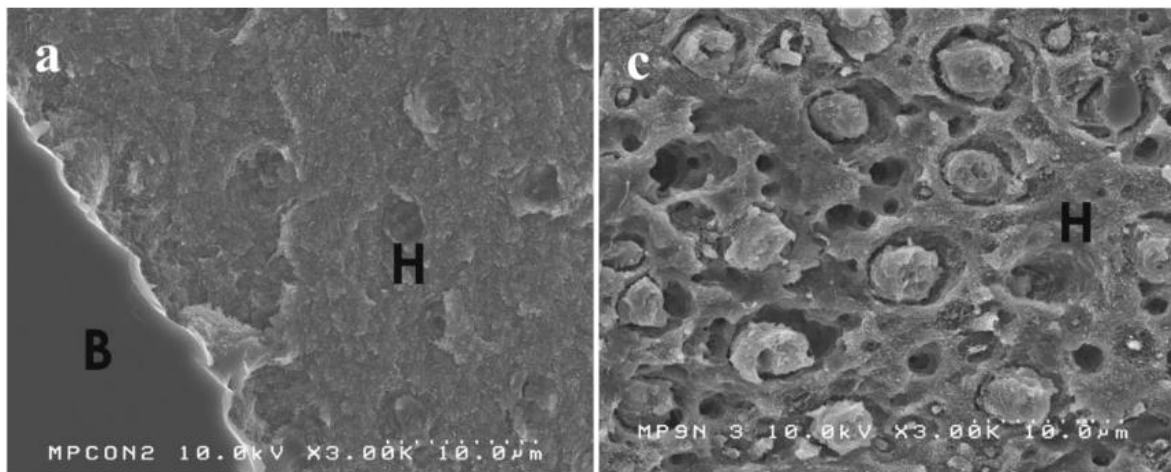


Figure 15 : Images MEB d'une coupe de dent au niveau de la couche hybride. (a) : Échantillon test in vitro après 24H de collage. (c) : Échantillon placé in vivo dans un environnement buccal humain pendant 2 ans, montrant l'altération structurale des fibrilles de collagène. H : couche hybride; B : Résine adhésive [25].

L'importance de cette hydrolyse dépend étroitement de la qualité de l'infiltration initiale de la résine. Plus la zone de dentine déminéralisée est large et mal imprégnée, plus la proportion de collagène non exposé à l'eau augmente, favorisant la diffusion des fluides et la déstructuration progressive des fibrilles. Cette désorganisation affaiblit la cohésion de la couche hybride et entraîne, à long terme, une réduction de la force d'adhésion entre la dentine et la résine [27].

4.1.2 Diffusion et plasticisation par l'eau

Les résines adhésives sont sensibles à la pénétration de l'eau dans leur réseau polymérique. Cette diffusion est facilitée par la présence de monomères hydrophiles, de microfissures initiées par l'hydrolyse des liaisons ester, ou encore par des zones présentant des défauts de polymérisation.

En présence d'eau, un phénomène de plasticisation peut alors se produire, entraînant plusieurs effets délétères.

D'abord, une diminution de la rigidité du matériau. Les molécules d'eau s'intercalent entre les chaînes de polymères et interagissent avec les groupements polaires, réduisant ainsi les forces d'interactions inter-chaîne et entraînant une augmentation de la mobilité des chaînes polymériques [28]. Cette eau dite « liée » forme des liaisons hydrogène avec les groupements hydrophiles du polymère, provoquant une plasticisation interne sans nécessairement provoquer une perte de matière [29].

L'absorption d'eau provoque également un gonflement ou « swelling » de la matrice entraînant une diminution de la rigidité et la dureté du matériau se traduisant par une baisse du module d'élasticité [26].

Ito et al. (2005) rapportent qu'un échantillon très hydrophile (12,8% en poids d'eau absorbée) perd environ 73 % de son module d'élasticité après 3 jours d'immersion, alors qu'un matériau peu hydrophile (0,55% en poids d'eau absorbée) ne perd que 15 % sur la même période ; les résines commerciales étudiées ont présenté des pertes de module d'élasticité comprises entre 19 et 42 % [30].

Malacarne et al. (2006) ont montré que la quantité d'eau absorbée varie selon la formulation adhésive et notamment de l'hydrophilie des monomères qui les composent. Le taux d'absorption d'eau était plus faible pour les adhésifs les moins hydrophiles [29].

Ces modifications se traduisent par une baisse de la résistance mécanique (résistance au cisaillement et à la traction) de l'ensemble.

Abdalla et al. ont montré une réduction significative de la résistance à la microtraction après 4 ans de stockage dans l'eau par rapport à 24 heures [31].

La plasticisation modifie également les propriétés thermomécaniques du polymère. La température de transition vitreuse diminue, ce qui signifie que le polymère devient plus flexible à température ambiante. Cette diminution de la température de transition vitreuse s'accompagne d'une augmentation de la déformation plastique sous charge, rendant le matériau plus susceptible de se déformer de façon permanente lors d'efforts mécaniques [28]. De plus, la résistance viscoélastique du polymère diminue, traduisant une perte de rigidité et une altération de la capacité du matériau à résister aux contraintes cycliques en milieu humide [30][32].

4.1.3 Solubilisation et lixiviation des monomères résiduels, charges et additifs

Même après polymérisation, les résines adhésives contiennent des monomères résiduels non réticulés, des charges et divers additifs (agents de remplissage, stabilisants, initiateurs) susceptibles de subir un processus de solubilisation et de lixiviation lorsqu'ils sont exposés à l'eau ou à la salive.

Le phénomène commence par la solubilisation, qui correspond à la dissolution partielle de composants de la résine directement dans le milieu aqueux, sans nécessairement migrer vers l'extérieur de la matrice. Les monomères hydrophiles résiduels, comme le HEMA ou le TEGDMA, présentent une forte affinité pour l'eau et peuvent se dissoudre à l'intérieur du

polymère [33]. Contrairement à la plasticisation, où l'eau intercale les chaînes polymériques et réduit directement la rigidité, la solubilisation entraîne une modification progressive de la structure interne de la matrice par perte de matière et création de zones de porosité. On parle d'eau « libre » [29].

La lixiviation est l'étape suivante : il s'agit de la migration physique de ces molécules dissoutes hors de la résine, dans la dentine ou le milieu environnant. Cette diffusion est facilitée par la plasticisation du polymère, par les microfissures et l'eau libre présente dans la matrice. Les composants susceptibles d'être lixiviés comprennent les monomères résiduels, certaines charges ou additifs.

Cette fuite progressive de composants hydrosolubles se traduit par une baisse mesurable de la masse du matériau.

Malacarne et al. (2006) observent une baisse progressive de la masse des résines adhésives testées les plus hydrophiles dès le 2^e jour d'immersion dans l'eau. Cette perte de masse correspondait à l'élution de monomères non polymérisés (HEMA, TEGDMA, Bis-GMA) et à la dissolution d'additifs hydrophiles [29].

La solubilisation et la lixiviation des composants non réticulés entraînent une création de microcavités et de porosités au sein de la couche hybride, réduisant la cohésion mécanique et favorisant les phénomènes d'hydrolyse secondaire. Elles participent également à la biodégradation enzymatique et bactérienne en libérant dans le milieu des substrats organiques favorables à l'activité des MMPs et des bactéries cariogènes [34].

4.1.4 Nanofuites et gradient hydrique

Le nanoleakage correspond à la pénétration de petites molécules ou ions dans la couche hybride entre la résine et la dent, même lorsqu'aucune fissure n'est visible. Il traduit l'existence de microzones poreuses où l'eau ou d'autres substances peuvent circuler, révélant une perméabilité de l'interface.

Dans les systèmes adhésifs « mordantage et rinçage », le nanoleakage survient souvent lorsque la résine n'infiltre pas complètement la dentine déminéralisée, laissant des zones partiellement imprégnées. Avec les adhésifs auto-mordant, bien que la résine déminéralise et infiltre simultanément, des couches très hydrophiles peuvent retenir de l'eau résiduelle, ce qui peut conduire à une polymérisation incomplète et à la formation de microzones perméables dans la résine [35].

Ainsi, le nanoleakage révèle que les adhésifs ne pénètrent jamais complètement le réseau de collagène, et que la perméabilité de la couche hybride varie du haut vers le bas, contribuant à la dégradation à long terme de l'interface résine-dentine.

Ce phénomène peut être mis en évidence en microscopie électronique après imprégnation au nitrate d'argent, révélant les canaux nanométriques empruntés par les fluides au sein de la couche hybride. Ces structures caractéristiques sont décrites sous le terme de "water trees" [36] (figure 16).

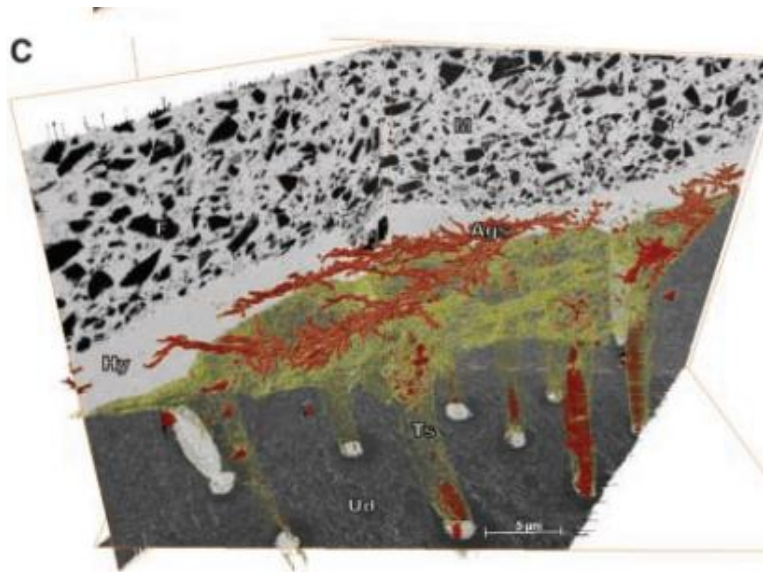


Figure 16 : Photomicrographies MEB obtenues par tomographie FIB après alignement, segmentation et reconstruction du modèle (volume total d'environ $25 \times 25 \times 25 \mu\text{m}^3$), illustrant les water trees (en rouge) et l'enveloppe externe de la dentine non affectée et des tubules dentinaires (en jaune). Ag(s) : Nitrate d'argent ; Hy : Couche hybride ; T(s) : Tubules dentinaires ; M : Matrice adhésive ; F : charges adhésives ; Ud : Dentine non affectée [36].

Les molécules d'eau peuvent pénétrer dans l'interface adhésive via le nanoleakage, et la dégradation hydrolytique qui en découle entraîne l'élargissement des voies de nanoleakage [37]. Ce phénomène illustre ainsi l'interdépendance des différents mécanismes de dégradation de l'interface.

Au-delà du nanoleakage, un autre mécanisme de mouvement hydrique contribue à la dégradation de la couche hybride : le gradient hydrique. La dentine, particulièrement la dentine intertubulaire, est hydrophile en raison de sa matrice collagénique riche en groupements polaires et de sa présence d'eau libre dans les tubules. À l'inverse, la résine polymérisée est relativement hydrophobe, surtout dans les zones riches en monomères hydrophobes comme le Bis-GMA ou l'UDMA. Cette différence de polarité crée un gradient chimique et osmotiques au sein de la couche hybride [38].

Ce phénomène est particulièrement significatif dans les adhésifs de type SAM où la couche hybride présente un gradient de polarité marqué de la dentine profonde (très hydrophile) vers la résine superficielle (plus hydrophobe) [39].

L'eau circule ainsi en réponse à ce gradient, où elle agit comme vecteur de dégradation : elle favorise les réactions d'hydrolyse, la lixiviation des composants résiduels ou encore la plasticisation du réseau polymérique, initiant ainsi un processus de détérioration progressive de l'interface adhésive [38].

Tableau 1 : Tableau récapitulatif des différents modes de dégradation chimique de l'interface dentine-résine adhésive.

Mécanisme chimique	Processus	Conséquences sur l'interface dentine – résine adhésive
Hydrolyse des polymères résineux	- Rupture des liaisons ester du polymère de résine en présence d'eau	- Fragilisation du réseau polymérique - Diminution de la densité réticulaire - Perte de cohésion mécanique - Apparition de microfissures
Hydrolyse du collagène	- Rupture des liaisons peptidiques du collagène en présence d'eau	- Altération de la structure du collagène - Perte de cohésion mécanique
Plasticisation	- Intercalation d'eau entre chaînes polymériques	- Gonflement de la matrice - Augmentation de la déformabilité, ramollissement du matériau - Réduction de la résistance mécanique - Fatigue prématurée
Solubilisation et lixiviation	- Dissolution des monomères hydrophiles résiduels, charges et additifs - Migration de ces molécules hors de la matrice	- Perte de matière, création de zones poreuses - Libération de monomères/charges/additifs - Diminution de la résistance mécanique
Nanoleakage	- Circulation d'eau et autres fluides au sein de la couche hybride via des microzones poreuses	- Persistance de zones perméables, pénétration de fluides - Catalyse et amplification des autres phénomènes (hydrolyse, plasticisation, lixiviation)
Gradient hydrique	- Différence de pression osmotique entre la dentine hydrophile et la résine adhésive hydrophobe	- Persistance de zones perméables, pénétration de fluides - Catalyse et amplification des autres phénomènes (hydrolyse, plasticisation, lixiviation)

4.2 Dégradation biologique (biodégradation)

La dégradation biologique, ou biodégradation, désigne l'ensemble des processus enzymatiques endogènes et exogènes qui altèrent les constituants organiques de la couche hybride et de la matrice résineuse. Contrairement à la dégradation chimique, principalement liée à l'eau et aux phénomènes d'hydrolyse, la biodégradation implique l'action d'enzymes d'origine dentinaire, salivaire ou bactérienne, capables d'hydrolyser les liaisons peptidiques et estérifiées des composants de l'interface.

Ces mécanismes, étroitement interdépendants, contribuent à la perte de cohésion mécanique de l'interface dentine-résine adhésive, à la réduction de la résistance adhésive, à la réinfiltration bactérienne et la récurrence carieuse [38].

4.2.1 Dégradation enzymatique de la matrice collagénique

4.2.1.1 Par les Métalloprotéases matricielles

Les métalloprotéinases matricielles (MMPs) sont des endopeptidases dépendantes du zinc, naturellement présentes dans la dentine, où elles participent au remodelage physiologique de la matrice extracellulaire, à la maturation de la dentine et aux mécanismes de défense pulpaire.

Les MMPs principales impliquées dans la biodégradation de la couche hybride sont la collagénase (MMP-8) et les gélatinases (MMP-2 et MMP-9), synthétisées par les odontoblastes et intégrées dans la dentine minéralisée sous forme latente. Leur activité est régulée par les TIMPs (Tissue Inhibitors of Metalloproteinases) [40].

La latence des MMPs est assurée par un mécanisme appelé "cysteine switch" : un résidu cystéine du propeptide de l'enzyme se lie au zinc catalytique, empêchant ainsi l'accès de l'eau au site actif et bloquant l'hydrolyse du collagène (figure 17).

Lors du protocole de collage, l'acidification de la dentine (par mordantage ou auto-mordantage) entraîne une déminéralisation partielle et expose les fibrilles de collagène. Le changement de pH, combiné à d'autres facteurs tels que le stress oxydatif ou l'action des cathepsines cystéines, rompt le cysteine switch, libérant le zinc et activant le site catalytique des MMPs [40,41].

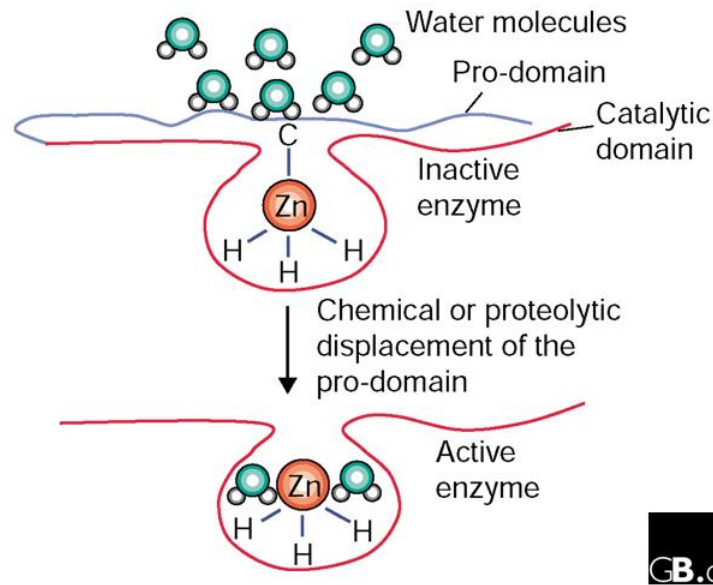


Figure 17 : Schéma explicatif du "Cysteine Switch" [41].

Une fois activées, les MMPs hydrolysent directement les liaisons peptidiques du collagène exposé dans les zones non infiltrées par la résine, entraînant progressivement la perte de cohésion de la couche hybride. Ce mécanisme enzymatique se distingue de l'hydrolyse chimique passive par l'eau, qui agit lentement et de manière non spécifique, tandis que les MMPs ciblent sélectivement la triple hélice et les régions vulnérables du collagène. De nombreuses études montrent l'aspect microscopique de cette dégradation enzymatique de la matrice collagénique.

Pashley et al. (2004) montrent dans leur étude la dégradation protéolytique du collagène dans les échantillons de dentine déminéralisée à l'acide orthophosphorique conservés pendant 250j dans l'huile pure par rapport aux échantillons conservés 250j dans de la salive artificielle contenant des inhibiteurs de protéases. Les figures 18 et 19 montrent que la matrice de collagène déminéralisée (CM) a été dissoute dans l'échantillon vieilli dans la salive artificielle (flèche) et a été préservée dans l'échantillon vieilli dans la salive artificielle contenant des inhibiteurs de protéases. De plus, des dépôts de cristallites sont observés le long de la surface de coupe de la dentine et le long du front de déminéralisation [42].

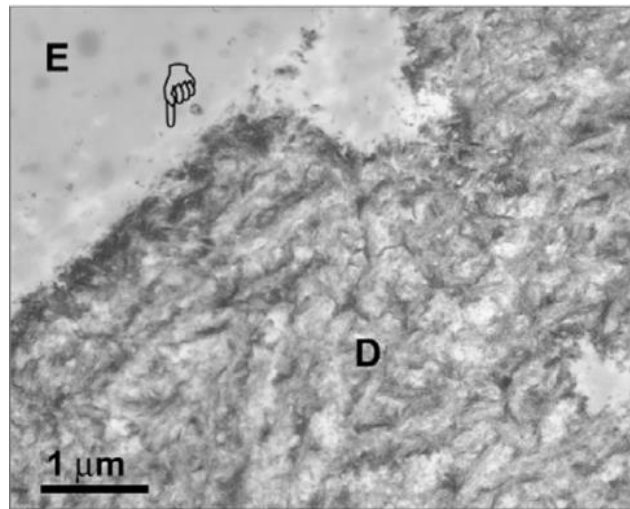


Figure 18 : Image MET de dentine mordancée à l'acide incubée dans la salive artificielle pendant 250 jours. CM : Collagène déminéralisée ; D : Dentine. E : Résine époxy. [42].

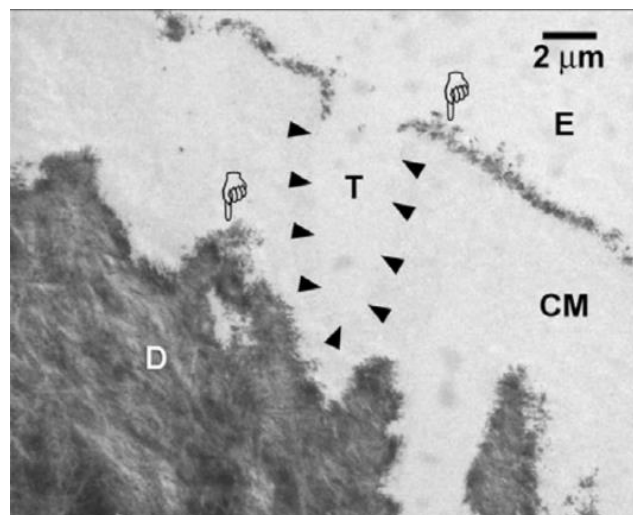


Figure 19 : Image MET de dentine mordancée à l'acide incubée dans de la salive artificielle contenant des inhibiteurs de protéases pendant 250 jours. CM : Collagène déminéralisée ; D : Dentine ; E : résine époxy ; T : Tubule dentinaire. [42].

Carrilho et al. (2007) ont démontré, dans leur étude, l'importance du phénomène de dégradation enzymatique de la matrice collagénique dans l'interface adhésive. Des échantillons de troisièmes molaires ont été restaurés selon un protocole adhésif « mordantage & rinçage », puis conservés pendant 6 mois dans de la salive artificielle avec ou sans inhibiteurs de protéases.

La figure 20 illustre clairement la différence entre les deux conditions :

- Sans inhibiteurs de protéases (A) : les tubules dentinaires sont majoritairement exposés, et le collagène intertubulaire est partiellement dégradé (*), témoignant de l'activité enzymatique endogène (MMPs et cathepsines).
- Avec inhibiteurs de protéases (B) : les tubules sont entièrement obstrués par la résine (flèches noires) et la dentine intertubulaire est uniformément recouverte d'adhésif (*), signe d'une préservation de la matrice collagénique et d'une meilleure stabilité de la couche hybride [43].

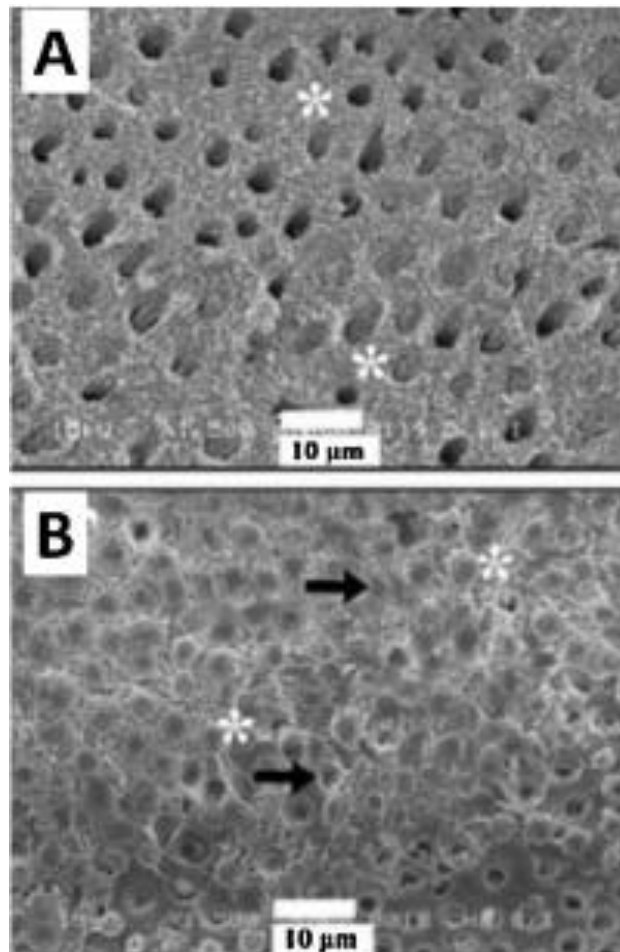


Figure 20 : Image MEB représentant une coupe au niveau de la couche hybride après 6 mois de conservation dans la salive artificielle sans (A) et avec inhibiteur de protéases (B) [43].

De même, Hebling et al. (2005) ont étudié le comportement in vivo de molaires primaires lactéales restaurées 6 mois auparavant selon un protocole adhésif M&R et un composite avec et sans pré-traitement à la Chlorhexidine 2%, un inhibiteur de protéases.

Après coloration à l'acide phosphotungstique et à l'acétate d'uranyle, ils observent dans le groupe témoin (A) une couche hybride presque complètement dégénérée et des zones de vide (astérisque). Dans le groupe ayant subi le pré-traitement à la Chlorhexidine 2% (B), la couche hybride apparaît normale (figure 21).

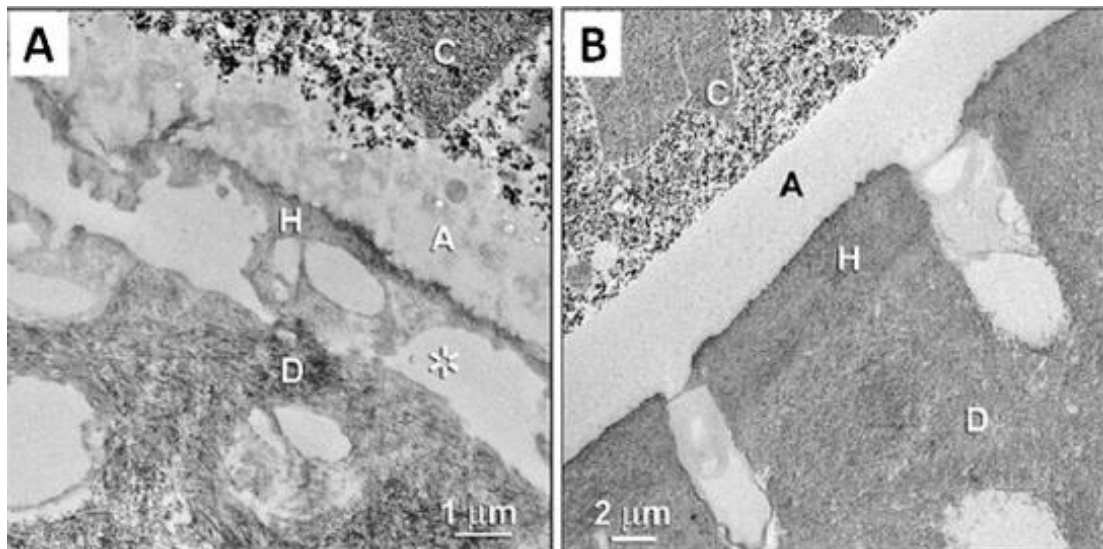


Figure 21 : Analyse TEM de la couche hybride de molaires primaires restaurées 6 mois auparavant, sans (groupe témoin) et avec pré-traitement à la Chlorhexidine 2% après coloration à l'acide phosphotungstique et à l'acétate d'uranyle. H : Couche Hybride. D : Dentine. C : Composite. A : Adhésif. [44].

Après imprégnation au nitrate d'argent, ils observent dans le groupe témoin (C) de nombreuses infiltrations sous forme de dépôts de nitrate d'argent noirs qui remplissent presque complètement la couche hybride. L'argent a comblé les espaces remplis d'eau qui ont remplacé les fibrilles de collagène. Dans le groupe ayant subi le pré-traitement à la Chlorhexidine 2% (D), ils observent des dépôts de nitrate d'argent en quantité beaucoup plus faible et plus éparpillés dans la couche hybride (pointeur) (figure 22).

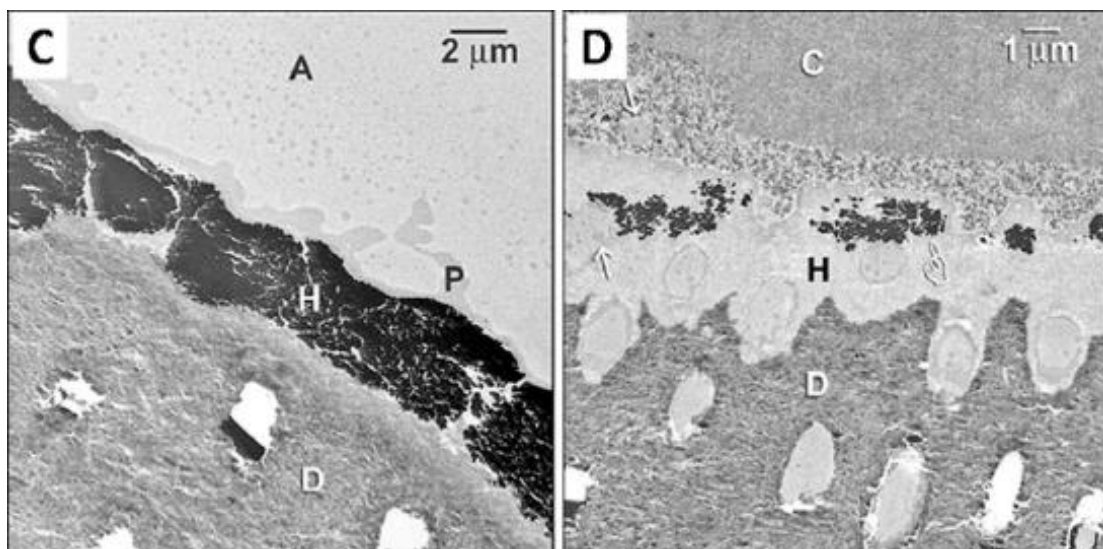


Figure 22 : Analyse TEM de la couche hybride de molaires primaires restaurées 6 mois auparavant, sans (groupe témoin) et avec pré-traitement à la Chlorhexidine 2% après imprégnation au nitrate d'argent. A : Adhésif ; H : Couche hybride ; D : Dentin ; C : résine composite ; P : Copolymères d'acide polyalcyénoïque. [44].

Cette dégradation enzymatique la matrice collagénique entraîne l'apparition de zones poreuses qui fragilisent l'interface dentine - résine adhésive et entraînent une baisse des propriétés mécaniques et une perte de rigidité de l'ensemble.

Carriho et al. (2009) montrent dans leur étude de 2009 une baisse significative du module d'élasticité ainsi qu'une solubilisation du collagène dans les échantillons de dentine déminéralisée incubés dans la salive artificielle sans pré-traitement à la Chlorhexidine 2% par rapport aux échantillons prétraités à la Chlorhexidine 2% [45].

4.2.1.2 Par les Cathepsines cystéines

Les cathepsines cystéines constituent une seconde famille d'enzymes protéolytiques présentes dans la dentine, en particulier les cathepsines B, K et L. Produites par les odontoblastes, elles sont capables de diffuser dans les tubules dentinaires via le fluide dentinaire et participent au remodelage physiologique des tissus [40].

La figure 23 montre la présence de la cathepsine B dans les tubules dentinaire visualisée par contraste interférentiel différentiel après immunomarquage à l'aide d'anticorps anti-cathepsine B.

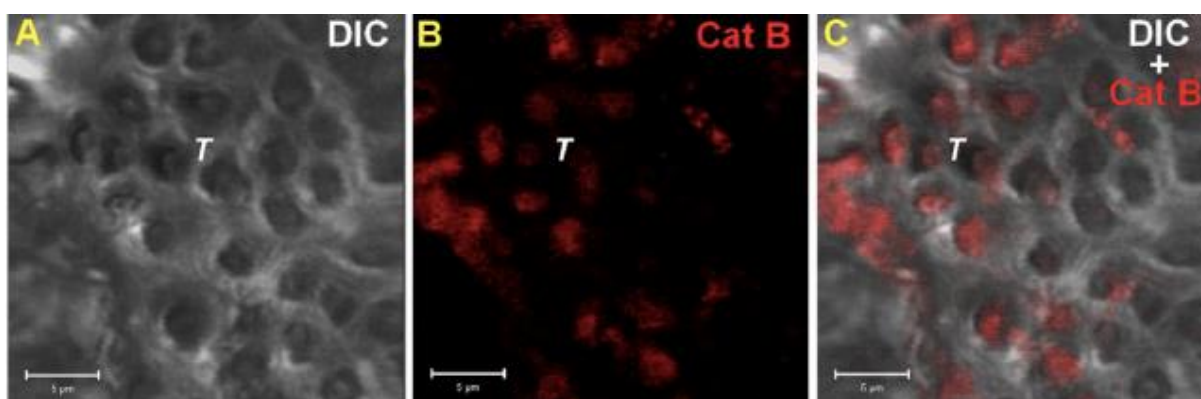


Figure 23 : Cathepsine B dans les tubules dentinaires. Coupe transversale du tissu dentinaire visualisée par contraste interférentiel différentiel (DIC) (A). La cathepsine B intratubulaire a été immunomarkuée à l'aide d'un anticorps primaire anti-cathepsine B humaine de lapin et d'un anticorps secondaire anti-IgG de lapin de souris conjugué à l'Alexa Fluor 594® dans le canal rouge (B). Images fusionnées (C). T : Tubules. [40]

Les cathepsines cystéines agissent préférentiellement en milieu légèrement acide (pH 5–6), correspondant aux conditions retrouvées dans la dentine déminéralisée après mordantage ou sous une restauration adhésive exposée à l'humidité [40].

Leur action sur la matrice collagénique est double :

D'une part, elles dégradent directement certaines régions du collagène, notamment les télépeptides, c'est-à-dire les extrémités libres et flexibles des chaînes polypeptidiques qui ne participent pas à la formation de la triple hélice (figure 24). Ces zones plus accessibles servent de points d'attaque privilégiés, et leur hydrolyse fragilise les extrémités des fibrilles, facilitant la désorganisation du réseau collagénique. Cette action directe est particulièrement importante dans les zones où la résine n'a pas complètement infiltré le collagène, contrairement à l'hydrolyse chimique par l'eau, qui agit plus lentement et de manière non spécifique sur les liaisons peptidiques du collagène exposé.

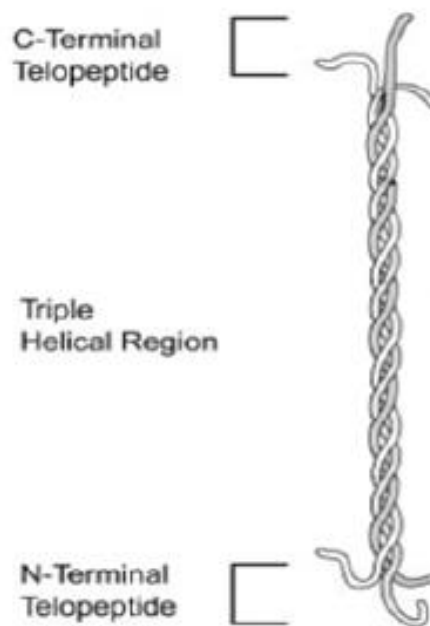


Figure 24 : Schéma représentant la triple hélice du collagène et ses extrémités appelées télépeptides [46].

D'autre part, les cathepsines cystéines contribuent à l'activation indirecte des MMPs. Elles clivent le propeptide contenant le résidu cystéine responsable du "cysteine switch" (figure 17), levant ainsi l'inhibition du site catalytique des MMPs latentes. De plus, elles peuvent dégrader les TIMPs (inhibiteurs naturels des MMPs), amplifiant encore l'activité des MMPs.

Cette synergie enzymatique crée un cercle vicieux : les cathepsines fragilisent les télépeptides, activent les MMPs, qui à leur tour dégradent la triple hélice du collagène exposé, accélérant considérablement la biodégradation de la matrice organique [40].

4.2.2 Dégradation enzymatique de la matrice résineuse

La résine adhésive utilisée pour restaurer la dentine est exposée à un environnement biologique complexe comprenant la salive, les enzymes tissulaires endogènes et les bactéries buccales. Ces facteurs interagissent avec la résine et le collagène de la couche hybride, entraînant une biodégradation progressive qui fragilise l'interface dentine-résine et favorise l'apparition de caries secondaires.

4.2.2.1 Par les enzymes salivaires

La salive contient à la fois des éléments inorganiques, comme le calcium et le magnésium, et des éléments organiques, principalement des protéines.

Certaines de ces protéines possèdent une activité estérasique, impliquée dans la dégradation des matériaux dentaires à base de résine.

Parmi elles, l'estérase salivaire humaine (HSDE) se distingue par sa capacité à hydrolyser efficacement le Bis-GMA, un monomère largement utilisé dans les composites et les adhésifs dentaires. Par ailleurs, des activités proches de celles de la cholestérol estérase (CE) et de la pseudocholinestérase (PCE) ont été détectées dans la salive [47]. Des études ont montré que les enzymes commerciales CE et PCE peuvent rompre les liaisons ester présentes dans la matrice de résine, et que l'HSDE, présentant des propriétés similaires, exerce un effet comparable sur ces monomères [48,49].

D'autres protéines salivaires participent à la dégradation de la matrice résineuse. L'albumine salivaire possède également une activité de type CE et PCE particulièrement lorsqu'elle est liée au zinc-alpha2-glycoprotéine (ZAG). Le complexe ainsi formé participe à la dégradation enzymatique de la matrice résineuse en milieu alcalin [50].

Les propriétés mécaniques de la résine sont diminuées par cette activité estérase.

Oskoe et al. montrent dans leur étude de 2019 une diminution de la traction diamétrale et du module d'élasticité des résines composites incubées dans un milieu contenant de la salive artificielle et des enzymes estérases par rapport à celles incubées dans de la salive artificielle seule [51].

De plus, Kermanshahi et al. (2010) montrent que cette activité enzymatique est responsable de micro-infiltrations bactériennes à l'interface de collage entre la dent et la résine [52].

4.2.2.2 Par les enzymes bactériennes

Au sein du biofilm cariogène, plusieurs bactéries peuvent être responsables d'une dégradation de l'interface adhésive par infiltration marginale. *Streptococcus Mutans* (*S. Mutans*) constitue la principale espèce bactérienne responsable du processus de biodégradation.

Ces bactéries ont une plus grande affinité pour les résines composites par rapport à d'autres surfaces comme l'émail, les céramiques ou les amalgames [53].

De plus, elles sécrètent des enzymes estérases capables de dégrader les polymères méthacrylates présents dans les résines adhésives et composites. Ces enzymes hydrolysent spécifiquement les liaisons ester des monomères polymérisés comme le Bis-GMA, le TEGDMA ou l'UDMA, entraînant une fragmentation de la matrice organique du polymère [54].

Bourbia et al. (2013) ont démontré que l'incubation de résines adhésives à base de Bis-GMA pendant 30 jours dans un milieu contenant des *S. Mutans* entraînait une augmentation considérable de la rugosité de surface des résines par rapport au groupe témoin [54] (figure 25).

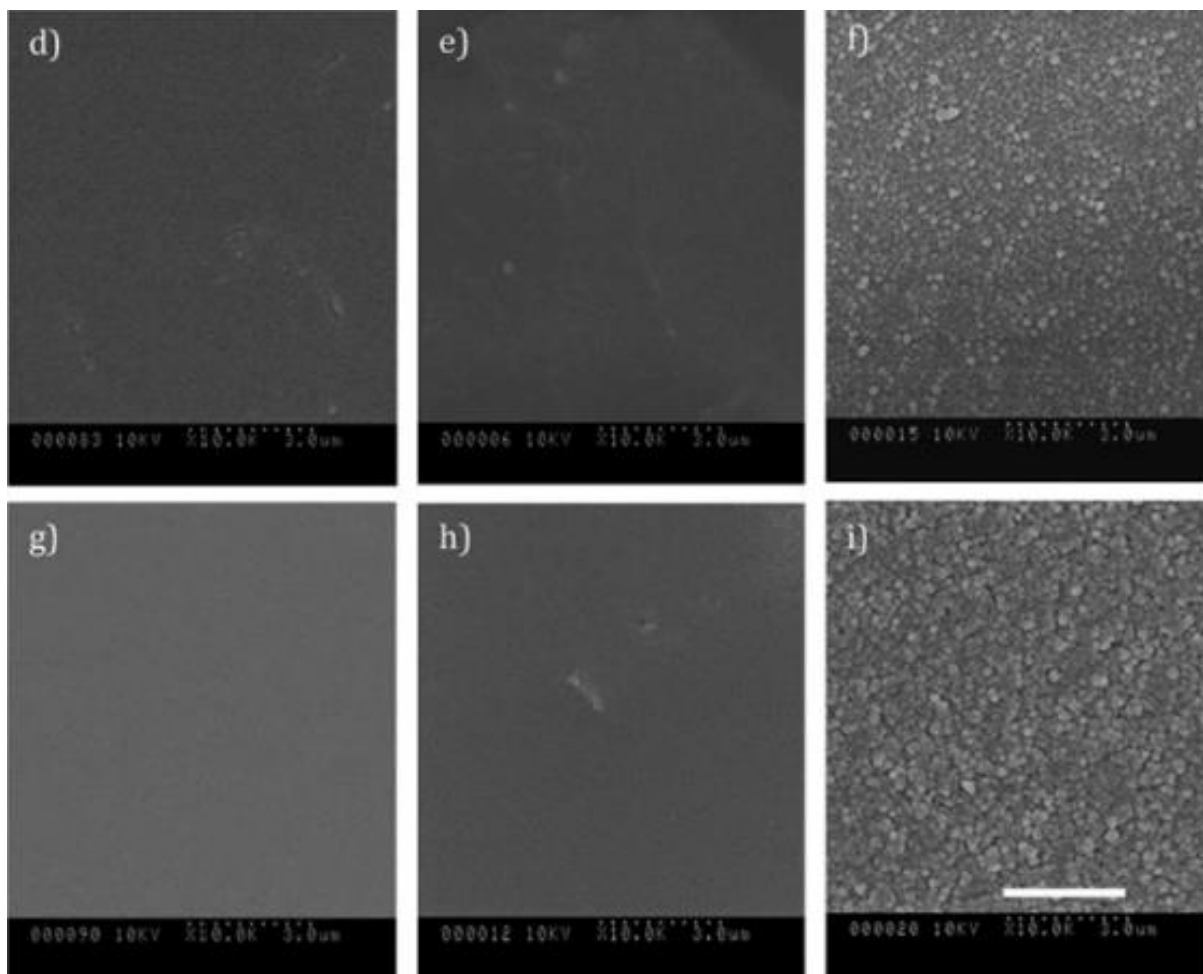


Figure 25 : Micrographies électroniques à balayage d'adhésif M&R (SB) et auto-mordant (EB) au jour 0 (d, g), après 30 jours d'incubation dans des flacons stériles contenant une infusion cerveau-cœur (e, h) et contenant des *S. Mutans* (f, i) [54].

La dégradation enzymatique conduit à la libération de produits de dégradation hydrosolubles, notamment le Bis-HPPP (bis-hydroxypropoxyphényl propane) issu de l'hydrolyse du Bis-GMA, le TEG (triéthylène glycol) issu de l'hydrolyse du TEGMA, ainsi que de l'acide méthacrylique [52].

Finer et al. (2004) ont démontré que l'exposition des résines à une estérase bactérienne provoquait une augmentation significative de l'élution de ces composés, traduisant une rupture progressive du réseau polymérique [48].

La libération de ces sous-produits de dégradation ne se limite pas à une altération physico-chimique du réseau polymérique : elle influence également le comportement métabolique des bactéries présentes au niveau de la limite marginale. Plusieurs études ont montré que le Bis-HPPP et le TEG agissent comme substrats métaboliques pour *S. Mutans*, stimulent son adhésion et augmentent sa virulence [55–57].

Sadeghinejad et al. (2017) ont montré que le Bis-HPPP stimule l'expression des gènes codant pour les glucosyltransférases (gtfB, gtfC), enzymes essentielles à la synthèse du biofilm cariogène. Parallèlement, l'exposition au Bis-HPPP augmente la production d'estérases bactériennes, qui hydrolysent davantage les méthacrylates du réseau polymérique, contribuant ainsi à un cercle auto-entretenu de biodégradation [55].

De la même manière, Khalichi et al. (2004) ont observé que le TEG favorise la croissance et l'adhésion de *Streptococcus Mutans* ainsi que sa production d'acides. En renforçant l'expression des gènes codant pour les glucosyltransférases, le TEG contribue à la formation d'un biofilm plus dense et plus cariogène. Cette stimulation bactérienne facilite l'accumulation du biofilm sur la restauration, amplifiant l'attaque acide et le risque de carie secondaire au niveau des marges restauratrices [56,57].

Ce mécanisme enzymatique est amplifié en environnement acide ($\text{pH} < 5$), comme c'est le cas dans le biofilm cariogène riche en acides organiques issus du métabolisme bactérien. Le changement de pH augmente la perméabilité de la couche hybride, facilitant l'accès des enzymes à la matrice résineuse, et accélère simultanément l'hydrolyse chimique des liaisons ester [47].

Par ailleurs, bien que *Streptococcus Mutans* soit l'espèce la plus souvent étudiée dans le cadre de la biodégradation des matrices résineuses, d'autres micro-organismes présentent également une activité enzymatique significative.

Par exemple, *Enterococcus faecalis* a été identifiée comme capable d'hydrolyser des composites méthacrylates et d'exprimer une activité de type estérase ainsi que des activités « MMP-like » [47,58] ; cette capacité l'associe non seulement à la détérioration de la résine mais également à la progression de la dégradation de l'interface dentine-résine.

De plus, des études ont suggéré que le *Streptococcus Gordonii* peut également contribuer à la modification des propriétés mécaniques des matériaux résineux (par exemple réduction de la résistance à la flexion, modification de la rugosité de surface) et à une adhésion accrue sur ces matériaux, ce qui en fait un acteur potentiel de la biodégradation [59].

Cette diversification des espèces implique que l'attaque enzymatique de l'interface adhésive ne se limite pas seulement à *S. Mutans*, mais que le biofilm buccal dans son ensemble, avec sa richesse microbienne, peut participer à cette dégradation. Elle renforce ainsi l'idée que la durabilité des restaurations dépend non seulement de la qualité de la résine mais aussi de la gestion microbiologique de l'interface.

Par ailleurs, les acides organiques produits par le métabolisme bactérien, et en particulier l'acide lactique, contribuent également à la biodégradation de l'interface dentine-résine adhésive. L'acide lactique n'agit pas seulement en déminéralisant la dentine, comme dans le processus carieux classique, mais il influence aussi directement la résine adhésive. En raison de ses groupements polaires, il favorise l'absorption d'eau par la matrice polymérique, entraînant un gonflement localisé, la formation de micro-porosités et une plasticisation accrue. Ce phénomène facilite la pénétration d'eau et l'installation de microfissures dans la couche hybride, fragilisant progressivement l'interface [47,60].

De plus, des modèles expérimentaux simulant l'exposition d'un biofilm par une solution d'acide lactique ont montré une accélération de la fatigue de la dentine et une altération de l'interface dentine/composite, confirmant que cet acide constitue un facteur chimique et biologique aggravant la dégradation de la résine [61].

Ainsi, dans un environnement buccal cariogène, où la production d'acide lactique est importante, la couche hybride est exposée simultanément à des enzymes estérasiques et à une attaque acide chronique. Cette double contrainte favorise l'augmentation de la porosité, la pénétration d'eau et la vulnérabilité de l'interface aux infiltrations bactériennes, compromettant la durabilité des restaurations adhésives.

4.2.3 Dégradation par les neutrophiles subgingivaux

Les neutrophiles sont des cellules immunitaires clés de la réponse innée, dont le rôle principal est de phagocyter les bactéries et de réguler l'inflammation pour protéger les tissus buccaux. Dans les zones sous-gingivales, l'interface dentine-résine est exposée à ces cellules, particulièrement en présence d'un biofilm persistant.

Lorsqu'ils sont activés, les neutrophiles libèrent des enzymes, notamment des estérases capables de dégrader les monomères méthacrylates polymérisés présents dans les résines adhésives et composites.

Gitalis et al. (2019) ont montré que cette activité estérasique induit la libération de Bis-HPPP à partir du Bis-GMA et entraîne la dégradation du composite résineux après seulement 24 à 48 h d'incubation [62]. Parallèlement, ces cellules possèdent une activité de type MMP, responsable de l'hydrolyse de la matrice collagénique dentinaire, comme le montre la libération significative d'hydroxyproline à partir de dentine déminéralisée.

De plus, les neutrophiles sécrètent des protéases supplémentaires, telles que la cathepsine G, ainsi que des agents oxydants comme la myéloperoxydase et l'hypochlorite, capables de rompre certaines liaisons du réseau polymérique (par exemple les liaisons vinyle éther) [63].

La figure 26 résume cette combinaison d'activités (estérases attaquant le polymère résineux et MMP-like/protéases attaquant le collagène) qui fragilise l'interface dentine-résine et crée des microcavités favorables à l'infiltration bactérienne. Ceci participe à une diminution des propriétés mécaniques de l'interface adhésive.

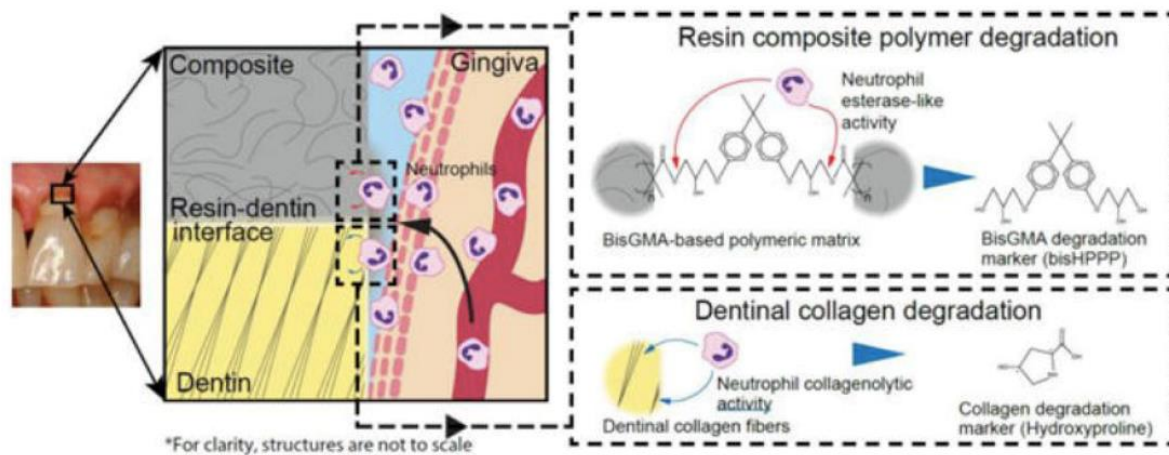


Figure 26 : Schéma illustrant la dégradation de l'interface dentine-résine adhésive par les neutrophiles du sillon subgingival [62].

Gitalis et al. (2020) ont montré que les échantillons incubés avec des neutrophiles présentaient une ténacité à la fracture significativement réduite par rapport aux échantillons témoins, démontrant l'impact mécanique direct de ces cellules sur l'interface résine-dentine [63].

Enfin, l'activité des neutrophiles peut être stimulée par l'inflammation locale, elle-même exacerbée par la présence de monomères et de produits de dégradation tels que le Bis-HPPP et le TEG. Ces molécules irritent le tissu gingival et favorisent la sécrétion enzymatique,

Ainsi, bien qu'essentiels à la défense immunitaire, les neutrophiles peuvent paradoxalement participer à la biodégradation des restaurations dentaires, compromettant l'intégrité des marges sous-gingivales et favorisant la formation de micro-fuites et la progression de caries secondaires.

D'une part, la dégradation exogène résulte de l'action des enzymes salivaires et bactériennes, dont l'activité estérasiqye hydrolyse la matrice résineuse du composite (a) et de l'adhésif (b). Cette hydrolyse libère des sous-produits tels que le Bis-HPPP, dérivé du Bis-GMA, qui stimulent la croissance et la virulence bactérienne (c).

The diagram illustrates the mechanism of action of Bis-GMA and Bis-HPPP in dental resin bonding. It shows the interaction between the resin components and the dental tissues (Enamel, Dentin, and Adhesive). The process involves the formation of a resin tag in the hybrid layer, which is stabilized by the action of Esterase. The diagram also shows the role of Bis-GMA and Bis-HPPP in the bonding process, with Bis-GMA forming a resin tag and Bis-HPPP acting as a cross-linking agent. The diagram is divided into three main sections: Enamel, Dentin, and Adhesive. The Enamel section shows the formation of a resin tag in the hybrid layer. The Dentin section shows the formation of a resin tag in the hybrid layer, which is stabilized by the action of Esterase. The Adhesive section shows the role of Bis-GMA and Bis-HPPP in the bonding process, with Bis-GMA forming a resin tag and Bis-HPPP acting as a cross-linking agent. The diagram also shows the role of Esterase in the bonding process, which is responsible for the formation of the resin tag in the hybrid layer. The diagram is labeled with 'Saliva', 'Bacteria', 'Esterase', 'Bis-HPPP', 'Bis-GMA', 'Resin', 'Adhesive', 'Dentin', 'Enamel', 'Resin tag in hybrid layer', 'Activated MMPs', 'CTs', 'Inactive MMPs', 'H⁺', 'Dentinal tube', and 'Bacteria'.

48

Tableau 2 : Tableau récapitulatif des différents modes de dégradation biologique de l'interface dentine- résine adhésive.

Mécanisme biologique	Processus	Conséquences sur l'interface dentine-résine adhésive
MMPs (Collagénases et gélatinases : MMP-2, MMP-8, MMP-9)	- Activation du site catalytique par acidification ou clivage des inhibiteurs (TIMPs) - Hydrolyse des liaisons peptidiques du collagène exposé	- Perte progressive de cohésion du réseau collagénique - Apparition de zones poreuses - Diminution de la résistance mécanique de la couche hybride
Cathepsines cystéines (B, K, L)	- Hydrolyse ciblée des télopeptides du collagène - Activation indirecte des MMPs via clivage du cysteine switch et des TIMPs	- Fragilisation des extrémités fibrillaires - Accélération de la dégradation du collagène - Amplification de l'activité MMP - Augmentation de la perméabilité de la couche hybride
Enzymes salivaires (Estérases humaines : HSDE, CE, PCE, albumine associée à ZAG)	- Hydrolyse des liaisons ester des polymères résineux (Bis-GMA, TEGDMA)	- Fragmentation progressive de la matrice polymérique - Formation de microcavités et porosités - Baisse de la résistance mécanique - Favorise l'infiltration de fluides et microfissures
Enzymes bactériennes (<i>Streptococcus mutans</i> , <i>Enterococcus faecalis</i> , autres bactéries buccales)	- Sécrétion d'estérases hydrolysant les polymères méthacrylates - Libération de sous-produits de dégradation augmentant la virulence bactérienne - Production d'acides organiques (lactique)	- Augmentation de la rugosité de surface - Infiltration marginale - Dégradation accrue de la résine et du collagène - Stimulation du biofilm cariogène et cercle auto-entretenu de biodégradation
Neutrophiles subgingivaux	- Libération d'estérases qui dégrade la matrice résineuse - Libération de MMPs-like, cathepsines et agents oxydants (myéloperoxydase, hypochlorite) qui dégradent la matrice collagénique	- Microcavités dans la couche hybride et fragilisation de l'interface dentine-résine - Baisse de la ténacité à la fracture - Exacerbation de l'inflammation locale

4.3 Dégradation physique

L'interface dentine-résine adhésive est soumise, dès la mise en service clinique, à un ensemble de sollicitations mécaniques et thermiques qui, au fil du temps, compromettent sa stabilité. Contrairement aux mécanismes chimiques ou biologiques, la dégradation physique résulte principalement de contraintes externes appliquées de manière répétée à la restauration, entraînant la formation de microfissures, la propagation de défauts internes et une perte progressive de cohésion au sein de la couche hybride.

Ces phénomènes jouent un rôle majeur dans l'affaiblissement tardif des restaurations adhésives, et agissent en synergie avec les dégradations hydrolytiques et enzymatiques décrites précédemment.

4.3.1 Contraction de polymérisation et contraintes résiduelles

La contraction de polymérisation constitue l'un des premiers phénomènes mécaniques responsables de la fragilisation de l'interface dentine-résine. Lors de la photopolymérisation, les monomères méthacrylates se lient pour former un réseau polymérique tridimensionnel. Ce processus s'accompagne d'un raccourcissement des distances intermoléculaires et d'un rétrécissement volumique global, généralement compris entre 1,5 % et 5 % selon la composition du matériau (charge, viscosité, nature du monomère) [11,64].

Lorsque cette contraction se produit dans un espace confiné tel qu'une cavité dentinaire, les déplacements du matériau sont limités par les parois rigides de la dent. L'énergie générée ne peut être dissipée librement et se transforme en contraintes résiduelles de polymérisation (polymerization shrinkage stress), susceptibles d'atteindre plusieurs mégapascals. Ces contraintes s'exercent directement au niveau de la marge adhésive, zone la plus vulnérable de la restauration [64].

Le niveau de contrainte dépend notamment du rapport de configuration cavitaire (facteur C), défini comme le rapport entre les surfaces liées et non liées du composite. Dans les cavités à facteur C élevé (classes I et II de Black), la mobilité du matériau est fortement restreinte, ce qui accentue les tensions transmises à l'interface adhésive. Lorsque la résistance de l'adhésif et de la couche hybride est inférieure à la contrainte générée, il peut se produire une rupture partielle du joint de collage [65,66].

Il dépend également du module d'élasticité du composite et de l'adhésif. Les matériaux ayant un module d'élasticité élevé (plus rigides) transmettent plus directement les contraintes à l'interface, tandis que les composites plus flexibles peuvent absorber partiellement les tensions, réduisant le risque de microfissures ou de décollement marginal. Ainsi, le choix du matériau et la compatibilité de rigidité entre le composite et l'adhésif sont essentiels pour limiter les dommages initiaux de la couche hybride [66,67].

Des études expérimentales, notamment celles de Kurokawa et al. (2007) [67] et de Peutzfeldt & Asmussen (2004) [68] ont montré que l'adaptation marginale des restaurations est directement liée au retrait volumique et aux contraintes de polymérisation.

Au niveau de l'interface adhésive, ces contraintes résiduelles ont plusieurs conséquences délétères.

Borkowski et al. (2007) expliquent dans leur étude que l'augmentation du retrait volumique entraîne une augmentation des contraintes interfaciales et, par conséquent, du risque de rupture interfaciale [69].

Ces contraintes peuvent provoquer la formation de microfissures (figure 28) dans la couche hybride, le décollement marginal ou l'apparition de gaps, facilitant l'infiltration d'eau et de fluides buccaux [69,70].

Calheiros et al. (2004) ont démontré une relation directe entre les valeurs de contraintes de contractions et les micro-infiltrations [71].

Ces micro-infiltrations établissent un terrain favorable à la dégradation progressive de l'interface, en facilitant l'action conjointe des mécanismes chimiques et enzymatiques.

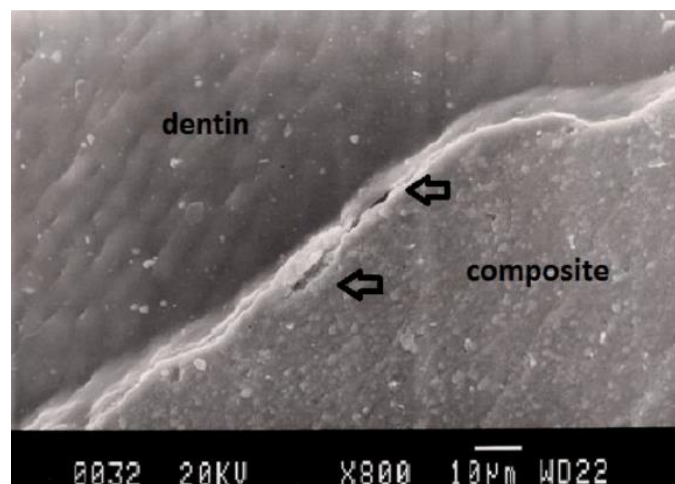


Figure 28 : Image MEB montrant une micro-fissure entre la dentine et un système adhésif Clearfil Tri-S Bond (SAM 1) et un composite Clearfil Majesty [72].

4.3.2 Fatigue mécanique sous la fonction masticatoire

La fatigue mécanique de l'interface dentine-résine résulte de l'exposition répétée aux charges cycliques générées lors de la mastication. Même lorsque les contraintes appliquées à chaque cycle restent inférieures à la résistance ultime de l'adhésif ou du composite, l'accumulation de micro-dommages peut entraîner la propagation progressive de fissures et la détérioration de l'interface [73].

De plus, la mastication quotidienne correspond à des centaines de milliers de cycles par an et certaines habitudes, comme le bruxisme, peuvent accentuer ces contraintes répétées et accélérer le processus de fatigue.

Mutluay et al. (2013) ont développé une méthode expérimentale particulièrement intéressante pour étudier cette fatigue : un dispositif de flexion quatre points appliqué à un spécimen comportant deux interfaces collées identiques. Cette configuration permet non seulement de mesurer la résistance en fatigue, mais aussi d'observer directement les zones d'endommagement au sein de l'interface après chargement.

Grâce à cette approche, les auteurs ont montré que l'endurance apparente de l'interface résine-dentine n'est que d'environ 13 MPa, une valeur plus de 70 % inférieure à celle de la dentine coronaire et du composite commercial étudié. Ces résultats confirment que l'interface

est bien le maillon faible du système adhésif lorsqu'elle est soumise à des sollicitations répétées [74].

La figure 29 représente les interfaces résine-dentine étudiées par observation sous microscopie électronique à balayage. L'image d correspond à un échantillon non soumis à un chargement cyclique, l'interface y est intacte. L'image e présente l'interface d'échantillons soumis à un chargement cyclique ayant rompu par fatigue. Des signes de dégradation y sont visibles, notamment des microfissures au sein de la couche hybride et de l'adhésif (flèches) [74].

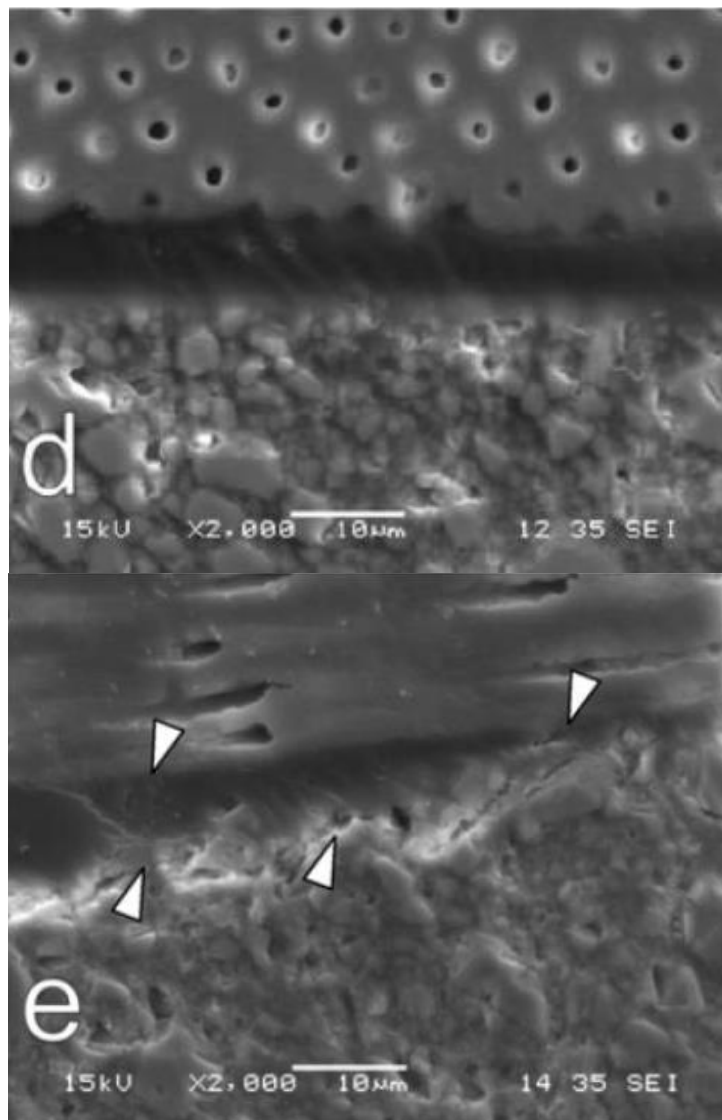


Figure 29 : Images MEB d'échantillons de dentine coronaire collée à un composite de résine commercial après rupture par fatigue. (d) : Interface collée d'un échantillon témoin (non soumis à une charge cyclique). Aucun signe de dégradation n'est visible. (e) : Interface collée restante d'un échantillon soumis à la fatigue, montrant des microfissures dans la couche adhésive et la couche hybride (flèches) [74].

Par ailleurs, l'imagerie nano-dynamique (NanoDMA) a montré que les cycles de charge entraînent une déformation viscoélastique locale à travers l'adhésif et la couche hybride, en

particulier dans les zones soumises à tension. Cette déformation répétée pourrait faciliter l'infiltration d'eau, augmenter la dégradation hydrolytique de la couche hybride et contribuer à la baisse de durabilité de l'interface [74].

Zhang et al. (2017) ont observé des phénomènes similaires, montrant que l'interface dentine–adhésif présente des microfissures et des zones de dégradation après stockage prolongé et cycles répétés, confirmant que la fatigue mécanique contribue à la détérioration progressive de l'interface collée [75].

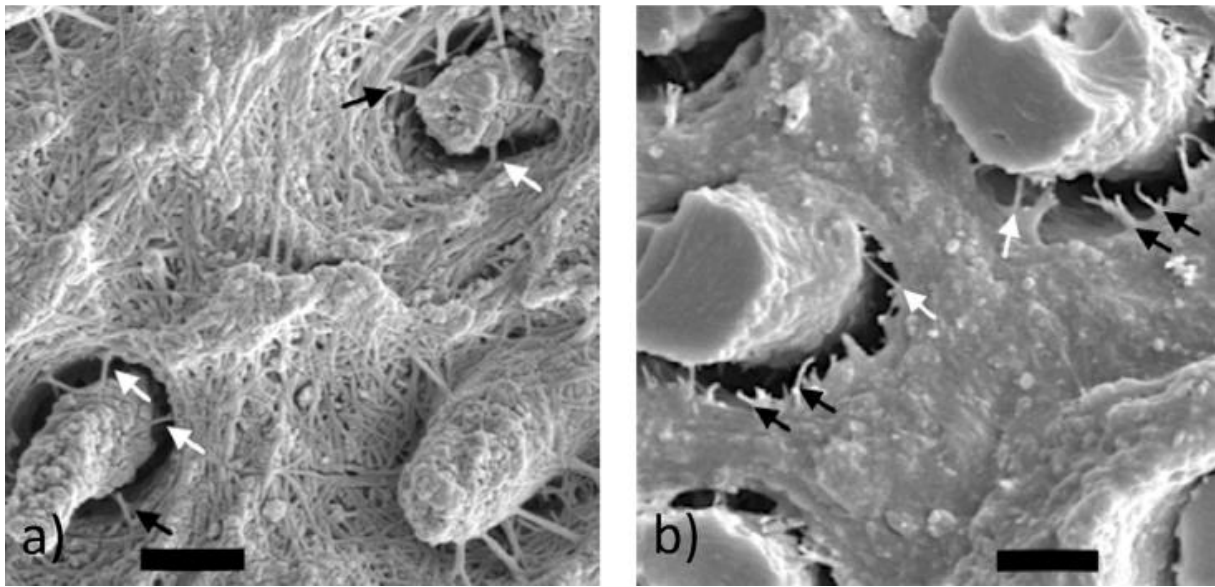


Figure 30 : Images MEB à fort grossissement des surfaces de fracture résultant de la propagation des fissures de fatigue après 6 mois de vieillissement. (a) : échantillon SB (Single Bond, M&R2). (b) échantillon SBMP (ScotchBond Multipurpose, M&R3) [75].

La figure 30 illustre l'état de l'interface dentine–adhésif après stockage prolongé et exposition à des cycles de charge répétés. On y observe clairement l'apparition de microfissures au sein de la couche hybride et de l'adhésif, ainsi que des zones de décollement partiel au niveau des tags résineux. Ces défauts sont localisés principalement dans les zones de transition entre la résine et le collagène et correspondent à des points de concentration de contrainte [75].

Ainsi, la fatigue mécanique apparaît comme un facteur majeur de dégradation différée des restaurations collées, créant des microfissures et des zones vulnérables dans l'interface dentine–résine qui peuvent ensuite favoriser l'infiltration d'eau, de fluides buccaux et d'enzymes, préparant le terrain à d'autres mécanismes de dégradation chimique et biologique.

4.3.3 Vieillissement thermique de l'interface collée

La cavité buccale est un environnement soumis à des variations thermiques importantes, généralement comprises entre environ 5 °C et 55 °C. À chaque changement de température, les matériaux dentaires subissent des variations dimensionnelles : ils se dilatent lorsqu'ils sont chauffés et se contractent lorsqu'ils sont refroidis.

Cependant, la dentine, l'adhésif et le composite présentent des coefficients de dilatation thermique différents, c'est-à-dire des capacités distinctes à se dilater ou se contracter. Lorsqu'ils sont solidarisés au sein d'un système restaurateur, ces différences de comportement thermique génèrent des contraintes répétées au niveau de l'interface dentine-résine favorisant l'apparition ou l'accentuation de microfissures au sein de l'interface adhésive, ce qui fragilise progressivement la couche hybride.

Le thermocyclage est ainsi utilisé comme un modèle expérimental standardisé pour reproduire ce type de vieillissement.

Huang et al. (2004) ont montré que 3000 cycles thermiques entre 5 °C et 55 °C entraînaient une dégradation marquée de la résistance au collage : pour les échantillons testés, la dentine mordancée à l'acide perdait environ 50 % de sa résistance, tandis que la dentine traitée avec un adhésif automordançant en perdait 38 %.

De plus, le mode de rupture évoluait vers des défaillances presque exclusivement adhésives, alors que près de 15 % des échantillons non thermocyclés présentaient initialement des ruptures cohésives [76].

El Araby et al. (2007) confirment également ces conclusions dans leur étude expérimentale. Ils observent en effet une baisse significative de la résistance au cisaillement des systèmes adhésifs testés après thermocyclage avec une variabilité selon les échantillons testés [77].

Le thermocyclage affecte la durabilité des interfaces dentine-adhésif en provoquant à la fois une diminution de la résistance collée et une augmentation de la perméabilité de la couche hybride.

Dans l'étude de Sangwichit et al. (2016), les cycles thermiques simulant les fluctuations buccales (5–55 °C) ont entraîné une dégradation significative de l'adhérence pour la majorité des systèmes adhésifs testés, avec des microfissures et des zones de décollement observables au niveau de la couche hybride. L'accumulation d'ions argent a mis en évidence une infiltration de l'interface, traduisant une augmentation du nanoleakage après thermocyclage [78].

Les figures 31 et 32 illustrent parfaitement cette accumulation d'ions argent au sein de la couche hybride après thermocyclage, confirmant visuellement l'impact de ces cycles thermiques sur la dégradation de l'interface [78].

Cette observation souligne que les cycles thermiques répétés provoquent une dégradation progressive des interfaces dentine-adhésif, aggravant les microfissures existantes et favorisant l'infiltration de fluides, ce qui peut préparer le terrain pour d'autres mécanismes de dégradation chimique et biologique, tout comme pour la fatigue mécanique.

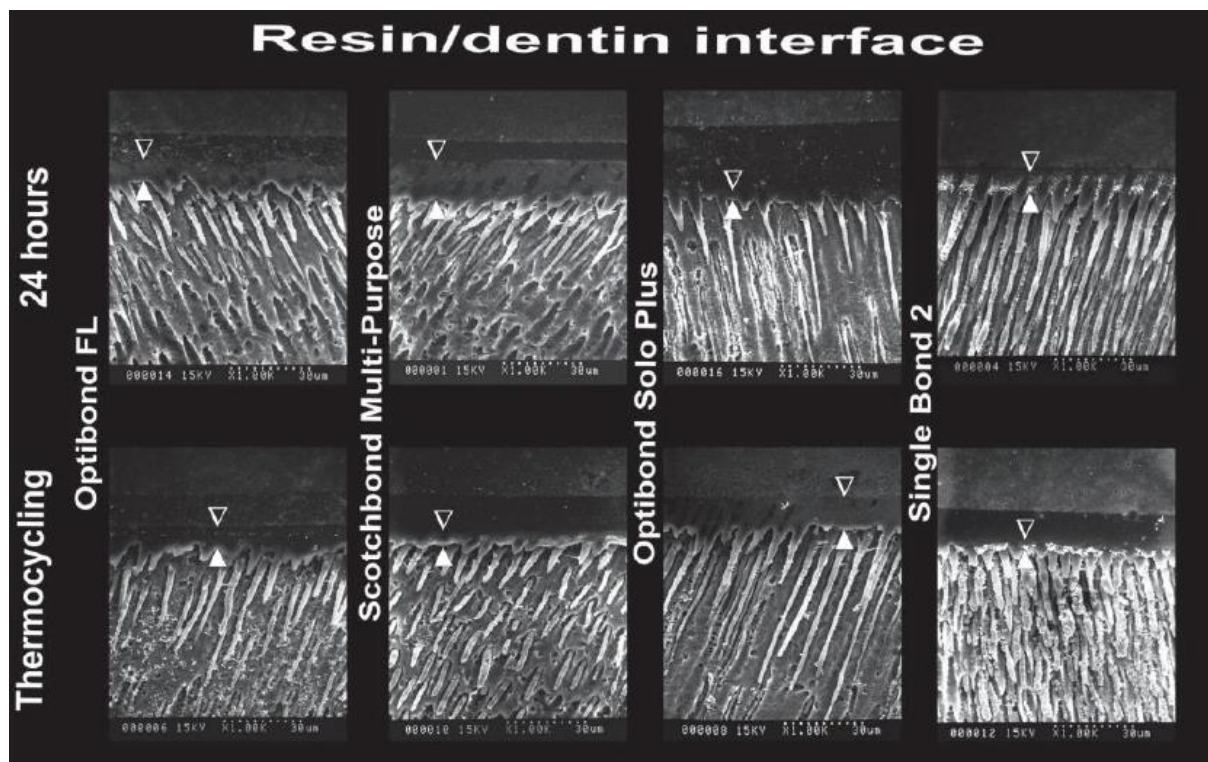


Figure 31 : Images MEB (x 1000) des interfaces résine-dentine des adhésifs de mordantage et de rinçage avec et sans thermocyclage (La structure entre les flèches représente les couches hybrides) [78].

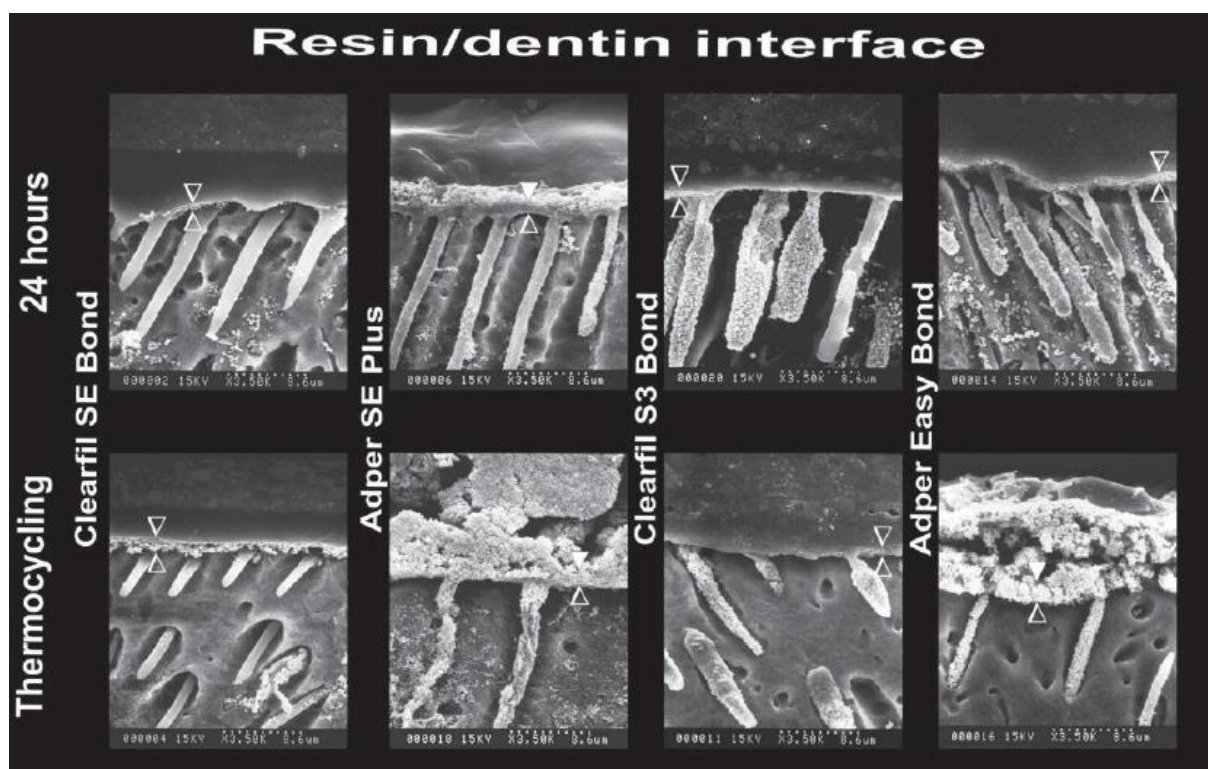


Figure 32 : Images MEB (x 3500) des interfaces résine-dentine des adhésifs auto-mordançants avec et sans thermocyclage (La structure entre les flèches représente les couches hybrides) [78].

Tableau 3 : Tableau récapitulatif des différents modes de dégradation physique de l'interface dentine-résine adhésive.

Mécanisme de dégradation	Description	Facteurs influents	Conséquences sur l'interface dentine-résine
Contraction de polymérisation et contraintes résiduelles	Rétrécissement volumique du composite lors de la photopolymérisation	- Facteur C - Module d'élasticité du composite et de l'adhésif - Composition du matériau	- Formation de microfissures - Décollement marginal - Gaps - Infiltration d'eau - Affaiblissement de la couche hybride
Fatigue mécanique sous la fonction masticatoire	Charges cycliques répétées entraînant l'accumulation de micro-dommages	- Fréquence et amplitude des cycles - Rigidité de l'adhésif/composite	- Propagation progressive de fissures - Microfissures dans la couche hybride - Décollement partiel - Infiltration d'eau et fluides buccaux
Vieillessement thermique	Dilatation et contraction différentielles de la dentine, adhésif et composite sous variations de température (5–55 °C)	- Coefficient de dilatation thermique des matériaux - Nombre de cycles thermiques	- Microfissures - Décollement - Diminution de la résistance collée - Augmentation du nano-leakage et infiltration de fluides

5 Rôle des adhésifs universels dans la durabilité de l'interface dentine-résine adhésive

5.1 Introduction aux adhésifs universels

L'évolution des systèmes adhésifs en dentisterie restauratrice s'inscrit dans une recherche constante d'un équilibre entre efficacité adhésive, durabilité de l'interface dentine-résine et simplification des protocoles cliniques. Si l'adhésion à l'émail mordancé est aujourd'hui considérée comme fiable et prédictible, l'adhésion à la dentine demeure un défi biologique et technique, en raison de la nature hydratée, hétérogène et vivante de ce substrat.

Les générations successives de systèmes adhésifs ont permis des avancées majeures dans la compréhension et la maîtrise de l'adhésion dentinaire, mais souvent au prix de protocoles cliniques complexes et fortement opérateur-dépendants, en particulier pour les systèmes mordantage-rinçage multi-étapes. Ces contraintes ont motivé le développement de systèmes plus simplifiés, conduisant à l'émergence des adhésifs universels, considérés comme la 8^e génération de systèmes adhésifs [20].

Les adhésifs universels ont été conçus pour répondre à un besoin clinique concret : disposer d'un système unique, polyvalent et simplifié, capable de s'adapter à différentes situations cliniques sans multiplier les produits ni les protocoles. Ils se distinguent par leur polyvalence d'utilisation, puisqu'ils peuvent être appliqués selon trois stratégies distinctes : en mode mordantage-rinçage, en mode automordançant ou en mordantage sélectif de l'émail [79]. Cette flexibilité représente l'un des principaux facteurs expliquant leur adoption rapide en dentisterie adhésive moderne.

La littérature récente souligne que ces systèmes représentent un progrès majeur, mais que leur durabilité n'est pas garantie de façon systématique et nécessite une compréhension approfondie de leurs mécanismes d'adhésion et de leurs limites potentielles [80,81].

5.1.1 Composition et monomères fonctionnels

Sur le plan compositionnel, les adhésifs universels reposent sur des formulations complexes associant monomères fonctionnels, solvants et systèmes d'initiation de polymérisation. Les monomères fonctionnels jouent un rôle central dans l'adhésion à la dentine, en assurant à la fois une interaction micromécanique avec le réseau collagénique et, pour certains d'entre eux, une liaison chimique avec l'hydroxyapatite résiduelle [79,82].

Plusieurs monomères fonctionnels peuvent être retrouvés dans les adhésifs universels, notamment le 10-méthacryloyloxydecyldihydrogénophosphate (10-MDP), le 4-META (4-méthacryloxyéthyl trimellitate anhydride), le GPDM (glycérophosphate diméthacrylate), ainsi que divers monomères phosphoniques ou carboxyliques [19,83].

Parmi ceux-ci, le 10-MDP est le monomère le plus largement documenté dans la littérature scientifique. Il présente la particularité de former des complexes ioniques stables avec le calcium de l'hydroxyapatite, tout en conservant une hydrophilie suffisante pour diffuser au sein de la dentine partiellement déminéralisée. Cette capacité à combiner adhésion micromécanique et liaison chimique explique l'intérêt particulier porté à ce monomère dans le développement des adhésifs universels contemporains [78,84].

Les formulations contiennent également des solvants, tels que l'eau et l'éthanol, indispensables pour assurer le transport des monomères à travers la smear layer et le réseau collagénique [79].

Certains systèmes intègrent aussi des charges nanométriques, dont la présence permet d'augmenter l'épaisseur du film adhésif et d'améliorer ses propriétés mécaniques après polymérisation [17].

5.1.2 Classification des adhésifs universels selon leur acidité

Les adhésifs universels ne constituent pas une catégorie homogène sur le plan chimique. Ils peuvent être classés selon leur niveau d'acidité, exprimé par le pH, paramètre déterminant de leur pouvoir de déminéralisation et de leur interaction avec la dentine. On distingue classiquement : les adhésifs ultra-doux (pH > 2,5), les adhésifs doux (pH ≈ 2–2,5) et les adhésifs intermédiairement forts (pH < 1,5) [19,85].

Cette classification reflète leur capacité à modifier la smear layer et à déminéraliser la surface dentinaire. Les systèmes les plus acides induisent une déminéralisation plus profonde, tandis que les adhésifs plus doux préservent davantage d'hydroxyapatite autour des fibrilles de collagène, favorisant ainsi les interactions chimiques avec des monomères fonctionnels tels que le 10-MDP. Ces différences de pH influencent directement la qualité de la couche hybride formée et auront des implications majeures sur la stabilité de l'interface collée au cours du temps [85]. La figure 33 résume les principaux adhésifs universels présents sur le marché en fonction de leur acidité.



Figure 33 : Schéma de la majorité des adhésifs universels présents sur le marché en fonction de leur acidité [86].

5.1.3 Place des adhésifs universels en dentisterie adhésive moderne

L'ensemble de ces caractéristiques vise un objectif clair : offrir un système unique, simple à utiliser, mais suffisamment performant pour répondre à une grande variété de situations cliniques.

Les revues systématiques récentes indiquent que les adhésifs universels présentent des performances de collage globalement comparables à celles des systèmes adhésifs classiques,

bien que leurs résultats varient en fonction de la formulation chimique, du pH, de la présence de monomères fonctionnels spécifiques et du protocole d'application [87].

Ainsi, bien qu'ils constituent une avancée majeure correspondant à la 8^e génération de systèmes adhésifs, les adhésifs universels ne garantissent pas intrinsèquement une durabilité supérieure de l'interface dentine-résine. Leur utilisation optimale repose sur une compréhension approfondie de leurs mécanismes d'adhésion, de leurs limites et de l'influence des stratégies cliniques employées.

5.2 Mécanismes d'adhésion à la dentine

L'adhésion à la dentine repose sur une combinaison de phénomènes micromécaniques et chimiques, rendus complexes par la nature intrinsèque du substrat dentinaire : humidité permanente, proportion élevée de matière organique, présence de tubuli et d'une smear layer variable selon les procédés de préparation.

Les adhésifs universels doivent donc composer avec ces contraintes pour générer une interface stable.

5.2.1 Formation de la couche hybride

La couche hybride résulte de l'interaction entre la dentine déminéralisée et les monomères hydrophiles des adhésifs, qui pénètrent dans le réseau collagénique et polymérisent pour former un réseau intégré, cohésif et interconnecté. Cette interface combine adhésion micromécanique, grâce à l'infiltration des monomères dans les fibrilles de collagène, et adhésion chimique, via les monomères fonctionnels capables de se lier à l'hydroxyapatite résiduelle.

La profondeur et l'organisation de la couche hybride varient selon le mode d'application.

5.2.1.1 En mode automordançant

En mode automordançant, les monomères acides contenus dans l'adhésif déminéralisent la dentine de façon progressive et superficielle, généralement sur moins de 1 μm [20].

Cette déminéralisation contrôlée permet au réseau collagénique de rester partiellement minéralisé et stable, favorisant une infiltration homogène des monomères hydrophiles et limitant la formation de zones non imprégnées. Une partie de l'hydroxyapatite est conservée autour des fibrilles de collagène, offrant la possibilité d'établir des liaisons chimiques avec les monomères fonctionnels [88].

5.2.1.2 En mode mordantage et rinçage

En mode mordantage et rinçage, l'application d'acide phosphorique entraîne une déminéralisation plus profonde ($\approx 3\text{--}5\ \mu\text{m}$), exposant un réseau collagénique largement dépourvu d'hydroxyapatite [20].

Cette profondeur accrue de déminéralisation modifie la dynamique d'infiltration des monomères. L'ensemble de la zone déminéralisée doit être imprégné par les composants de l'adhésif pour assurer la formation d'une couche hybride cohésive, ce qui rend le protocole particulièrement dépendant du contrôle de l'humidité dentinaire [89]. Une dentine trop sèche favorise le collapsus du collagène, tandis qu'un excès d'eau peut altérer la diffusion des monomères et la polymérisation.

La couche hybride obtenue est plus épaisse, mais cette épaisseur n'est pas nécessairement synonyme de meilleure qualité de l'interface. L'absence d'hydroxyapatite autour des fibrilles de collagène limite la possibilité d'interactions chimiques avec les monomères fonctionnels et expose davantage la matrice organique aux phénomènes de dégradation enzymatique [19,88].

5.2.1.3 Mordançage sélectif de l'émail : un compromis clinique

Le protocole de mordançage sélectif de l'émail combine ces deux approches pour adapter la déminéralisation à chaque substrat. Il consiste à appliquer l'acide phosphorique uniquement sur l'émail, tandis que la dentine est traitée directement par l'adhésif universel en mode automordançant.

Ce protocole permet de préserver l'hydroxyapatite dentinaire et le collagène tout en formant un relief micromécanique optimal sur l'émail. La nécessité de cette technique s'explique par les limitations du mode automordançant sur l'émail : l'acidité relativement faible des adhésifs universels n'induit qu'une déminéralisation superficielle de l'émail, insuffisante pour générer un microrelief étendu et une infiltration optimale des monomères [19,85,87].

Rosa et al. (2015) concluent d'ailleurs dans leur méta-analyse que le mordançage sélectif de l'émail pourrait être la meilleure stratégie pour optimiser le collage des adhésifs universels doux [90].

Ainsi, le mordançage sélectif permet de créer une couche hybride différenciée, adaptée à la fois à l'émail et à la dentine. C'est devenu le protocole recommandé dans la dentisterie adhésive moderne, car il maximise la sécurité et la longévité des restaurations sans sacrifier la performance sur aucun substrat [85,87,90,91].

5.2.2 Liaison chimique via le 10-MDP : un pilier de la stabilité

Au-delà de la rétention micromécanique assurée par la couche hybride, l'adhésion chimique joue un rôle déterminant dans la stabilité de l'interface dentine-résine adhésive. Le monomère fonctionnel le plus étudié dans les adhésifs universels est le 10-MDP (figure 34).

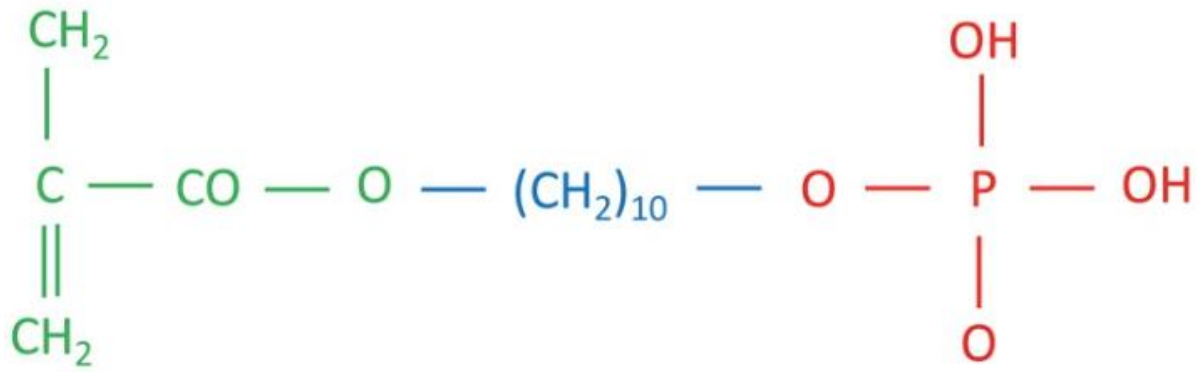


Figure 34 : Formule chimique du monomère fonctionnel 10-MDP (partie rouge : groupement fonctionnel phosphate ; partie bleue : groupement espaceur, partie verte : groupement méthacrylate) [19].

Sa spécificité réside dans sa capacité à former des complexes stables avec le calcium de l'hydroxyapatite, appelés sels MDP–Ca. Ces complexes s'organisent en nanocouches auto-assemblées à la surface du collagène (figure 35) [20]. Ces liens chimiques offrent une adhésion durable, plus résistante à l'hydrolyse que la simple rétention micromécanique [92].

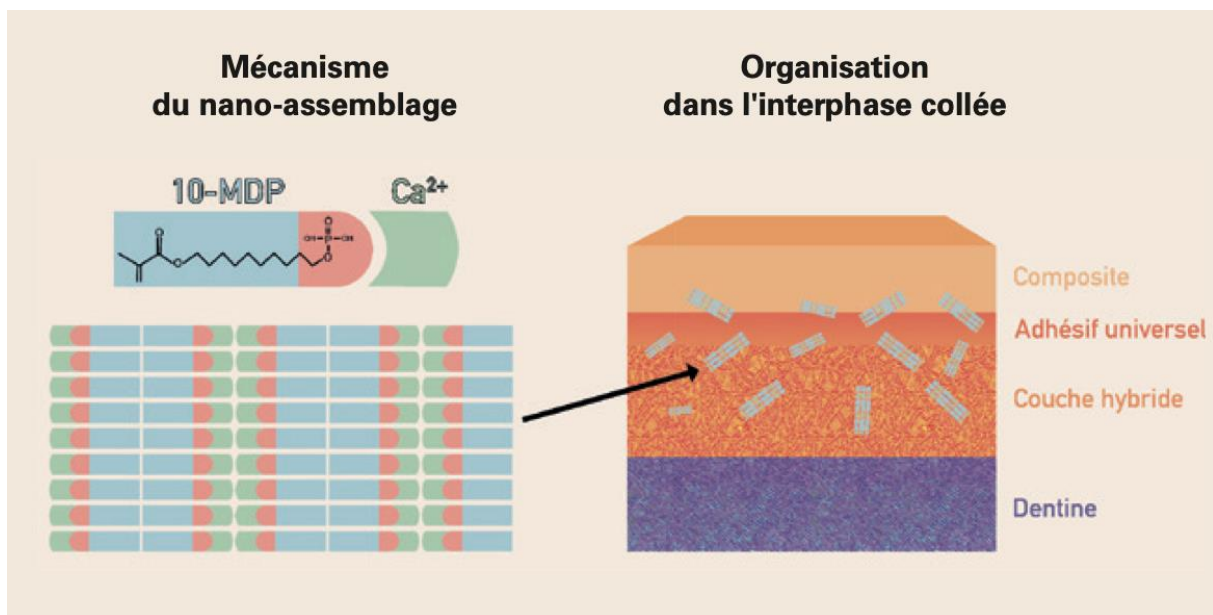


Figure 35 : Mécanisme de nano-assemblage du 10-MDP avec le calcium [93]

Le 10-MDP est également hydrophile de façon contrôlée, ce qui lui permet de pénétrer efficacement la dentine déminéralisée tout en limitant l'excès d'eau qui pourrait compromettre la polymérisation. Ces propriétés lui permettent de compléter la rétention micromécanique et de renforcer la cohésion de la couche hybride. L'efficacité de cette liaison chimique dépend directement de la quantité d'hydroxyapatite préservée, ce qui explique pourquoi les zones dentinaires déminéralisées superficiellement, comme dans les modes automordant ou de mordantage sélectif, sont particulièrement favorables à l'action du 10-MDP [19,79,88].

Par ailleurs, le 10-MDP présente également une affinité pour certains substrats métalliques, notamment les oxydes métalliques, ce qui lui confère la capacité d'établir des interactions chimiques avec des surfaces telles que les alliages non précieux ou le zirconium. Cette propriété élargit le champ d'application des adhésifs universels au-delà des tissus dentaires, notamment en dentisterie restauratrice indirecte [79].

D'autres monomères fonctionnels, tels que GPDM, 4-META et divers monomères phosphoniques ou carboxyliques, sont également présents dans certains adhésifs universels. Bien qu'ils soient moins étudiés et documentés que le 10-MDP, ils contribuent de manière complémentaire à la liaison chimique et à la cohésion de la couche hybride, renforçant l'interface dentine-résine adhésive [19,79].

En combinant infiltration micromécanique et liaison chimique, les adhésifs universels modernes parviennent à former une interface intégrée, cohésive et adaptable aux différents modes d'application, constituant ainsi la base structurale et chimique de la durabilité future de la restauration.

5.3 Avantages cliniques et impact des adhésifs universels sur la durabilité de l'interface dentine-résine adhésive

Les mécanismes d'adhésion spécifiques aux adhésifs universels décrits précédemment se traduisent, sur le plan expérimental et clinique, par des performances variables selon le mode d'application, la formulation du matériau et les conditions de vieillissement. La durabilité de l'interface dentine-résine adhésive constitue en effet un enjeu majeur, la majorité des échecs adhésifs étant liés à une dégradation progressive de cette interface plutôt qu'à une défaillance immédiate du collage.

5.3.1 Performances d'adhésion immédiates à la dentine

Les performances d'adhésion initiales constituent un indicateur essentiel pour évaluer l'efficacité des systèmes adhésifs universels à la dentine. À ce stade, les phénomènes de vieillissement n'ont pas encore eu le temps d'altérer significativement l'interface, ce qui permet d'apprécier essentiellement la qualité de l'adhésion immédiate.

Ces performances initiales sont fortement influencées par le mode d'application choisi. Plusieurs études ont montré que l'utilisation des adhésifs universels en mode mordantage-rinçage peut conduire à des valeurs de résistance au collage immédiates légèrement supérieures sur la dentine, en comparaison avec le mode automordant. Maciel Pires et al. (2022) ont notamment observé des valeurs de résistance à la microtraction (RMT) initiales plus élevées lorsque les adhésifs universels étaient appliqués après mordantage et rinçage [91].

Des résultats similaires sont rapportés dans la revue systématique de Cuevas-Suárez et al. (2019). La technique de mordantage-rinçage semble donner les valeurs d'adhérence immédiate les plus élevées par rapport à l'automordantage pour les systèmes adhésifs universels [85]. Ceci s'expliquerait notamment par une déminéralisation plus profonde et une rétention

micromécanique accrue au sein de la couche hybride plus épaisse formée après application de l'acide phosphorique [85,91].

Sur la figure 36, on voit que les systèmes adhésifs universels M&R figurent parmi les meilleures valeurs d'adhérence immédiates à la dentine.

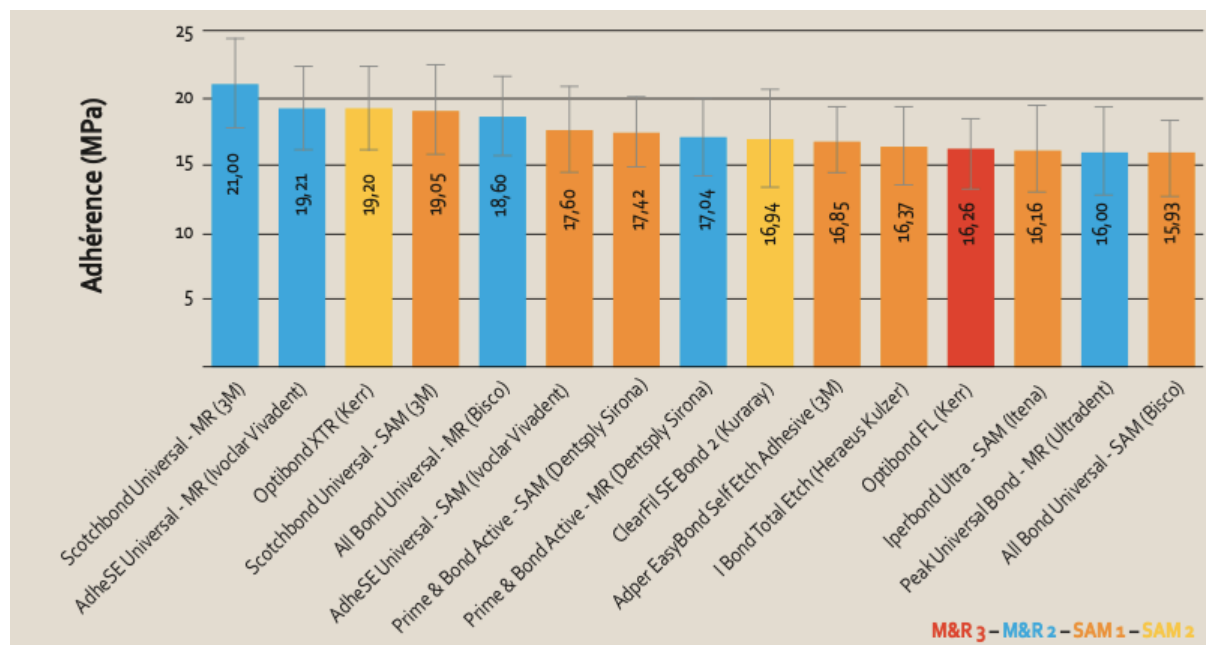


Figure 36 : Classement des différents adhésifs universels en fonction de leur valeur d'adhérence immédiate [94].

Ces observations expliquent en partie pourquoi le mode mordantage et rinçage reste largement utilisé en pratique clinique, en particulier lorsque l'évaluation se limite aux performances immédiates. Néanmoins, cette supériorité initiale observée en mode mordantage et rinçage doit être interprétée avec prudence. Une résistance initiale importante ne reflète pas nécessairement la qualité réelle de l'interface dentine-résine adhésive, ni sa capacité à résister aux mécanismes de dégradation qui s'installent progressivement avec le temps. Plusieurs auteurs soulignent que les tests de résistance initiale favorisent parfois des interfaces profondément déminéralisées, sans prendre en compte la stabilité structurale et chimique de la couche hybride dans le temps.

À l'inverse, les adhésifs universels appliqués en mode automordant présentent souvent des valeurs de résistance initiales légèrement inférieures ou équivalentes, mais associées à une interface plus homogène et moins dépendante du contrôle strict de l'humidité dentinaire. Nonato et al. (2022) montrent que ces systèmes offrent des performances initiales plus reproductibles, avec une variabilité moindre liée aux conditions opératoires (notamment des conditions d'humidité dentinaire), ce qui constitue un avantage clinique non négligeable [95].

De plus, dans l'étude d'Hanabusa et al. (2012), malgré aucune différence significative d'adhérence entre les modes mordantage et rinçage et automordant, l'analyse MET (microscopie électronique à transmission) montre qu'au niveau ultrastructural, le mode mordantage et rinçage a révélé des signes d'hybridation de faible qualité, sous la forme d'un réseau de collagène

poreux et peu infiltré par la résine, révélant une interface plus vulnérable à la biodégradation [82].

Ainsi, les différences observées entre les modes mordantage et rinçage et automordantage suggèrent que la résistance initiale ne peut être considérée comme un critère suffisant pour juger de la performance globale d'un système adhésif. En effet, une adhésion immédiate élevée ne garantit pas la stabilité à long terme de la couche hybride ni la résistance aux phénomènes de dégradation hydrolytique, enzymatique ou mécanique qui s'installent progressivement. L'épaisseur de la couche hybride et l'exposition excessive des fibrilles de collagène dans le mode mordantage et rinçage peuvent favoriser la formation de zones non infiltrées, le nanoleakage et la vulnérabilité aux protéases dentinaires telles que les métalloprotéinases matricielles (MMPs), compromettant la durabilité de l'interface.

5.3.2 Comportement au vieillissement et stabilité de l'interface

La stabilité de l'interface dentine-résine adhésive au cours du temps dépend de sa résistance aux mécanismes de dégradation chimique, biologique, physique. Dans ce contexte, le comportement au vieillissement des adhésifs universels a été largement étudié, notamment via des tests de microtraction, de thermocyclage et de vieillissement en milieu aqueux.

De nombreuses études montrent une diminution significative de la résistance au collage des adhésifs universels avec le temps, indépendamment du mode d'application (M&R ou AM) [85,91]. Par exemple, dans leur étude, Zhang et al. (2016) montrent qu'après 12 mois de stockage en eau, la RMT diminue pour la majorité des adhésifs testés, avec des caractéristiques ultrastructurales de dégradation du collagène au sein de la couche hybride. Cette diminution de la RMT est plus marquée pour le mode mordantage et rinçage par rapport au mode automordantage pour la majorité des adhésifs testés [84].

De plus, Stape et al. (2018) concluent dans leur étude que les adhésifs universels utilisés en mode automordantage produisent une adhésion à la dentine à long terme supérieure à celle obtenue en mode mordantage et rinçage [96].

Enfin, Maciel Pires et al. (2022) montrent dans leur étude une baisse significative de la RMT des adhésifs universels testés après 10 mois de vieillissement en salive artificielle quel que soit le mode d'utilisation. En revanche, le mode automordantage tend à offrir une meilleure stabilité de l'adhésion à la dentine sur le long terme que le mordantage et rinçage. En effet, les analyses par MEB témoignent d'une dégradation moindre au vieillissement pour le mode automordantage [91].

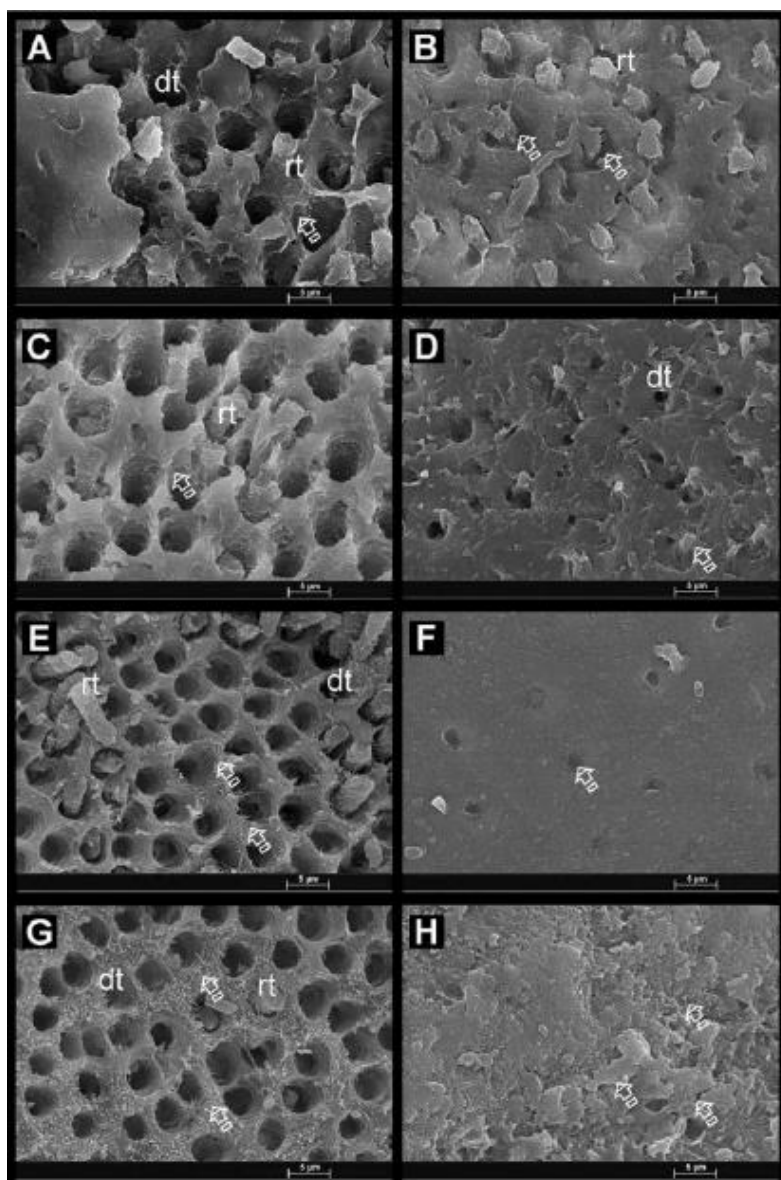


Figure 37 : Analyse fractographique MEB des échantillons testés après 10 mois de vieillissement en salive artificielle. A : Clearfill Universal Quick Bond (CBS) en mode M&R. B : CBQ en mode AM. C : Scotchbond Universal (SCH) en mode M&R. D : SCH en mode AM. E : Prime and Bond Active (PBA) en mode M&R. F : PBA en mode AM. G : ZipBond X (ZBX) en mode M&R. H : ZBX en mode AM. Dt : Tubules dentinaires ; rt : Tags résineux. [91].

Sur la figure 37, on distingue clairement une dégradation plus importante après 10 mois de vieillissement en salive artificielle pour le mode mordançage et rinçage (A ; C ; E ; G) par rapport au mode automordançant (B ; D ; F ; H) pour les 4 adhésifs testés en observation par microscopie électronique à balayage.

En mode mordançage et rinçage, on observe une dégradation importante du collagène dentinaire (flèches) et des tubules dentinaires (dt) qui sont complètement exposés et majoritairement non infiltrés par des tags résineux (rt).

En mode automordançant, la surface dentinaire est en général encore recouverte de résine et les tubules dentinaires ne sont que partiellement exposés [91].

La pression pulpaire simulée apporte également des informations pertinentes pour reproduire le comportement de la dentine vitale et étudier le vieillissement de l'interface collée. En favorisant un flux continu de fluide dentinaire, ce modèle met en évidence la sensibilité de

l'adhésion aux phénomènes hydrolytiques. Lezaja Zebic et al. (2018) montrent que, sous pression pulpaire, les adhésifs universels testés appliqués en mode automordançant conservent des performances d'adhésion plus stables que ceux utilisés en mordançage et rinçage [97].

Cette différence entre les différents modes d'application est principalement attribuée à la profondeur excessive de déminéralisation induite par l'acide phosphorique, qui expose un réseau collagénique largement dépourvu d'hydroxyapatite, limitant l'efficacité des liaisons chimiques du 10-MDP et augmentant la vulnérabilité aux enzymes dentinaires et à la dégradation hydrolytique. Le mode automordançant, en revanche, préserve davantage l'hydroxyapatite et permet une infiltration plus complète des monomères, limitant la formation de zones non imprégnées et de nanoleakage [94].

D'autres études confirment que la chimie des adhésifs universels joue un rôle majeur dans leur comportement au vieillissement. La formation de complexes MDP–Ca stabilise l'interface et limite l'hydrolyse du réseau collagénique, comme l'ont souligné de nombreux auteurs. Kaczor et al. (2018) rapportent que les adhésifs universels comportant du 10-MDP comme ScotchBond Universal et All-Bond Universal présentaient une nanofuite plus faible que ceux n'en contenant pas comme Peak Universal et G-Bond Plus [98].

Wang et al. (2017) montrent eux aussi que la liaison chimique stable formée par le 10-MDP au calcium de l'hydroxyapatite permet une meilleure durabilité de l'interface dentine-résine adhésive. En effet, ils ont observé que le thermocyclage a entraîné une altération significative de la RMT ainsi qu'une augmentation de la nanofuite pour les systèmes dépourvus de 10-MDP. À l'inverse, les matériaux contenant ce monomère fonctionnel n'ont pas montré de dégradation significative de leurs performances adhésives après vieillissement thermique [99].

Sur la figure 38, on observe que les systèmes adhésifs universels contenant le 10-MDP figurent parmi les meilleures valeurs d'adhérence à la dentine [94].

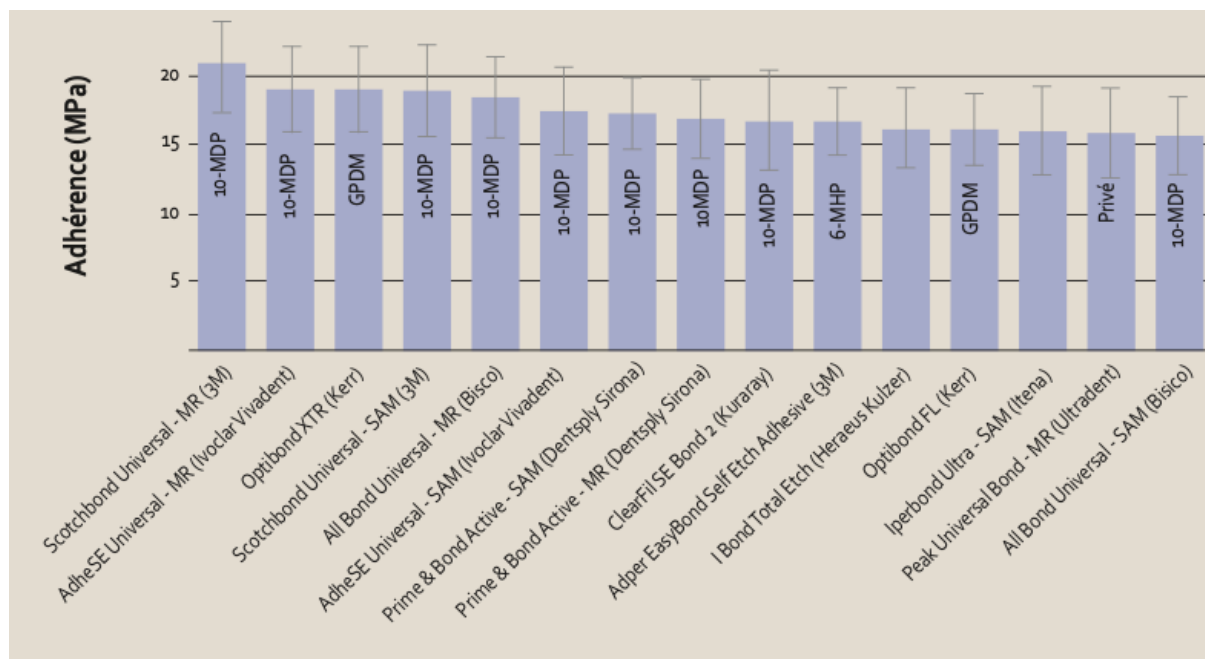


Figure 38 : Classement des différents adhésifs universels en fonction de leur valeur d'adhérence mettant en évidence les monomères fonctionnels qu'ils contiennent [94].

Enfin, Muñoz et al. (2015) ont conclu que les adhésifs universels contenant du 10-MDP maintiennent une RMT plus élevée et plus stable au fil du temps, tout en présentant une nanofuite réduite à l'interface après six mois de stockage en milieu aqueux [100].

Un autre facteur déterminant du comportement au vieillissement des adhésifs universels est leur niveau d'acidité, généralement exprimé par le pH du système.

Les adhésifs universels ne forment pas une classe homogène : en fonction de leur pH, ils sont classés en catégories telles que ultra-doux (pH > 2,5), doux (pH ≈ 2–2,5) et intermédiairement forts (pH < 1,5). Cette classification reflète leur capacité à déminéraliser la dentine et à pénétrer la surface dentinaire sans nécessiter un mordantage préalable agressif.

Le pH influence directement l'étendue de la déminéralisation et l'interaction des monomères fonctionnels avec l'hydroxyapatite résiduelle : une acidité plus élevée (pH plus bas) entraîne une déminéralisation plus profonde, mais expose également davantage le réseau de collagène non protégé, ce qui augmente la vulnérabilité de l'interface aux phénomènes hydrolytiques et enzymatiques et favorise le nanoleakage au cours du vieillissement [85,98].

Dans leur méta-analyses in vitro, Cuevas-Suarez et al. (2019) montrent que les performances adhésives des adhésifs universels après vieillissement dépendent du pH du matériau : les adhésifs intermédiairement forts et ultra-doux présentent une diminution significative de la résistance au collage après vieillissement, quel que soit le mode d'application, tandis que les adhésifs doux tendent à maintenir une meilleure stabilité des valeurs de résistance au fil du temps [85].

Ces données convergent vers le constat suivant : le mode automordant ou le mordantage sélectif de l'émail représente la meilleure stratégie pour maintenir une interface dentine-

résine adhésive stable à long terme, en limitant la dégradation hydrolytique et enzymatique, tout en optimisant l'infiltration de la résine et la formation de complexes chimiques durables.

En résumé, les adhésifs universels permettent de combiner une adhésion micromécanique efficace avec une liaison chimique pérenne grâce au 10-MDP. Leur durabilité dépend néanmoins fortement du mode d'application et du contrôle de l'humidité dentinaire. Si le mode mordantage et rinçage peut donner des valeurs initiales élevées, l'automordantage et le mordantage sélectif de l'émail (MSE) se révèlent supérieurs pour préserver la résistance au collage et la stabilité de l'interface sur le long terme.

5.3.3 Comparaison avec les systèmes adhésifs classiques

L'un des arguments majeurs avancés pour l'adoption des adhésifs universels n'est pas tant une supériorité intrinsèque de leur durabilité de liaison, mais plutôt leur simplification des protocoles cliniques, leur polyvalence d'utilisation et une variabilité opératoire réduite par rapport aux systèmes adhésifs classiques.

D'une part, en termes de résistance au collage à long terme et de durabilité de l'interface dentine-résine adhésive, les adhésifs universels n'offrent pas nécessairement des performances cliniques supérieures aux adhésifs d'ancienne génération [89].

Dans l'analyse la plus récente, il n'a pas été mis en évidence de différence significative entre les adhésifs universels et les adhésifs contrôles traditionnels en termes de rétention clinique, de défaillance marginale ou de sensibilité postopératoire quelle que soit la stratégie d'application (M&R, AM ou MSE) sur des périodes cliniques allant jusqu'à 4 ans [87].

D'autre part, les études comparatives suggèrent que la durabilité de l'interface dentine-résine adhésive dépend davantage du protocole d'application et de la chimie des monomères fonctionnels que du fait qu'un adhésif soit qualifié d'« universel » ou non. Plusieurs travaux montrent en effet que, lorsque les systèmes classiques et universels sont appliqués selon des protocoles optimisés et avec un contrôle rigoureux de l'humidité dentinaire, les valeurs de résistance au collage après vieillissement et thermocyclage sont souvent comparables, sans avantage systématique en faveur des adhésifs universels [87].

Dans ce contexte, l'intérêt des adhésifs universels réside non pas dans une supériorité intrinsèque de la durabilité de la liaison, mais dans leur flexibilité d'utilisation, leur simplification du protocole clinique et la réduction de la sensibilité opératoire, favorisant une meilleure reproductibilité des performances en conditions cliniques réelles.

Cependant, des données plus récentes suggèrent que l'évolution de la formulation des adhésifs universels, plutôt que leur simple polyvalence, pourrait constituer un levier d'amélioration de la durabilité de l'interface collée.

À ce titre, Brkanović et al. (2023) ont comparé différents adhésifs universels et mis en évidence que les systèmes contenant du 10-MDP et sans HEMA, tels que *G2-Bond Universal*, présentent une stabilité d'adhésion supérieure après vieillissement, associée à une nanofuite réduite et à une interface plus homogène, comparativement aux adhésifs universels contenant du HEMA [101].

Les auteurs attribuent ces résultats à la réduction de l'hydrophilie du polymère adhésif, limitant la sorption d'eau, la perméabilité de la couche adhésive et la dégradation hydrolytique à long terme. Ces observations suggèrent que les adhésifs universels de nouvelle génération, dépourvus de HEMA, pourraient offrir une meilleure durabilité de l'interface dentine-résine adhésive, non pas en raison de leur caractère universel, mais grâce à une optimisation de leur composition chimique [101,102].

Par ailleurs, la littérature met en avant que certains des adhésifs classiques de générations antérieures, en particulier les systèmes M&R à trois étapes, ont historiquement été considérés comme des « gold standards » pour la durabilité de liaison en dentine [103]. Des études comparatives suggèrent que ces systèmes peuvent parfois fournir une durabilité de collage égale ou supérieure à celle de certains adhésifs universels [104]. Cependant, ces avantages sont contrebalancés par une complexité accrue de mise en œuvre, une sensibilité opératoire plus élevée et un risque plus important d'erreurs cliniques qui peuvent compromettre la qualité de l'interface dans la pratique courante [17,103].

En résumé, les adhésifs universels ne surpassent pas systématiquement les systèmes adhésifs classiques en termes de durabilité intrinsèque de l'interface dentine-résine adhésive, mais ils offrent une polyvalence, une reproductibilité clinique et une réduction de la sensibilité opératoire qui en font des solutions très attractives pour la pratique contemporaine. Leur adoption ne repose donc pas tant sur une supériorité mécanique ou chimique de l'interface collée, mais bien sur une optimisation du rapport entre performance clinique et simplicité d'utilisation.

6 Conclusion

L'analyse des données scientifiques présentées met en évidence la complexité et la fragilité intrinsèque de l'interface dentine-résine adhésive. Contrairement à l'émail, dont l'adhésion reste relativement stable, la dentine constitue un substrat dynamique et biologiquement actif, soumis à de multiples mécanismes de dégradation au fil du temps.

Les phénomènes chimiques, biologiques et physiques agissent de manière complémentaire sur la couche hybride. L'hydrolyse des polymères, la plastification de la matrice résineuse, l'action enzymatique sur le collagène déminéralisé, ainsi que les contraintes mécaniques et thermiques répétées, entraînent microfissures, nanoleakage et perte progressive de résistance, expliquant en grande partie les échecs différés des restaurations adhésives observés cliniquement.

Les adhésifs universels représentent une avancée prometteuse pour améliorer la durabilité de l'interface dentine-résine adhésive. Leur polyvalence, associée à des monomères fonctionnels tels que le 10-MDP, favorise la préservation partielle de l'hydroxyapatite et la formation de liaisons chimiques plus stables. Toutefois, leurs performances dépendent de la formulation, de l'hydrophilie et du protocole clinique : ils ne constituent pas une solution universelle au sens absolu, mais plutôt un outil supplémentaire dont l'efficacité repose sur une utilisation raisonnée et une compréhension fine des mécanismes d'adhésion et de dégradation.

Des stratégies préventives peuvent également renforcer la durabilité de l'adhésion, notamment l'application de chlorhexidine pour inhiber les enzymes, l'ajout d'une couche de résine hydrophobe, le contrôle de l'humidité dentinaire et l'optimisation des protocoles de photopolymérisation. Ces étapes supplémentaires, bien que parfois contraignantes, pourraient jouer un rôle clé dans la stabilisation à long terme de l'adhésion dentinaire [21,105].

Par ailleurs, les recherches actuelles s'orientent vers des technologies innovantes, telles que le développement d'adhésifs à potentiel bioactif capables de moduler l'activité enzymatique, de favoriser la reminéralisation de la dentine ou d'interagir de manière plus dynamique avec le tissu dentinaire. L'émergence de matériaux de restauration auto-adhésifs et de systèmes hybrides intégrant des fonctions thérapeutiques ouvre également de nouvelles perspectives pour une dentisterie restauratrice plus durable et biologiquement intégrée [20].

Dans un contexte où les restaurations collées deviennent la norme, l'amélioration de la durabilité de l'interface collée constitue un enjeu clinique et scientifique majeur. La compréhension fine des mécanismes de dégradation et l'évolution raisonnée des matériaux et protocoles demeurent essentielles pour optimiser la longévité des restaurations et répondre aux exigences de la dentisterie moderne.

Bibliographie :

1. Parlement européen, Conseil de l'union européenne. Règlement (UE) 2024/1849 du Parlement européen et du Conseil du 13 juin 2024 modifiant le règlement (UE) 2017/852 relatif au mercure en ce qui concerne les amalgames dentaires et les autres produits contenant du mercure ajouté faisant l'objet de restrictions à l'exportation, à l'importation et à la fabrication. Journal officiel de l'union européenne. 13 juin 2024;L1849:1-6.
2. Goldberg M, Kulkarni AB, Young M, Boskey A. Dentin: structure, composition and mineralization. *Front Biosci (Elite Ed)*. 1 janv 2011;3(2):711-35.
3. Simon S, Cooper P, Berdal A, Machtou P, Smith AJ. Biologie pulpaire : comprendre pour appliquer au quotidien. *Rev Odonto Stomat*. 2008;37:209-35.
4. Stratmann U, Schaarschmidt K, Wiesmann HP, Plate U, Höhling HJ, Szuwart T. The mineralization of mantle dentine and of circumpulpal dentine in the rat: an ultrastructural and element-analytical study. *Anat Embryol (Berl)*. mars 1997;195(3):289-97.
5. Tjäderhane L. Dentin Basic Structure, Composition, and Function. In: Versiani MA, Basrani B, Sousa-Neto MD, éditeurs. *The Root Canal Anatomy in Permanent Dentition*. Cham: Springer International Publishing; 2019. p. 17-27.
6. Kawashima N, Okiji T. Odontoblasts: Specialized hard-tissue-forming cells in the dentin-pulp complex. *Congenit Anom (Kyoto)*. juill 2016;56(4):144-53.
7. Van Landuyt KL, Snauwaert J, De Munck J, Peumans M, Yoshida Y, Poitevin A, et al. Systematic review of the chemical composition of contemporary dental adhesives. *Biomaterials*. sept 2007;28(26):3757-85.
8. Vennat E. Étude expérimentale et numérique de l'infiltration de la dentine déminéralisée en surface par des résines composites. [Paris]: Ecole Centrale Paris; 2009.
9. Chaumont PE. La photopolymérisation des résines composites : données actuelles. [Nancy-Metz]: Université de Lorraine; 2012.
10. Giraud T, Ramel C, Raskin A. Les résines composites - Partie 1 - Composition et structure. *Biomatériaux Cliniques*. 15 mars 2018;3(1):10 21.
11. Kleverlaan CJ, Feilzer AJ. Polymerization shrinkage and contraction stress of dental resin composites. *Dental Materials*. déc 2005;21(12):1150-7.
12. Nakabayashi N. [Bonding mechanism of resins and the tooth]. *Kokubyo Gakkai Zasshi*. juin 1982;49(2):410.
13. Nakabayashi N, Kojima K, Masuhara E. The promotion of adhesion by the infiltration of monomers into tooth substrates. *J Biomed Mater Res*. mai 1982;16(3):265-73.
14. Tjäderhane L. Dentin bonding: can we make it last? *Oper Dent*. 2015;40(1):4-18.

15. Degrange M. Les systèmes adhésifs amélo-dentaires. *Réalités Cliniques*. 17 déc 2005;16(4):327.
16. Pashley DH, Tay FR, Carvalho RM, Rueggeberg FA, Agee KA, Carrilho M, et al. From dry bonding to water-wet bonding to ethanol-wet bonding. A review of the interactions between dentin matrix and solvated resins using a macromodel of the hybrid layer. *Am J Dent*. févr 2007;20(1):7-20.
17. Sofan E, Sofan A, Palaia G, Tenore G, Romeo U, Migliau G. Classification review of dental adhesive systems: from the IV generation to the universal type. *Ann Stomatol (Roma)*. 2017;8(1):1-17.
18. Santini A, Milia E, Miletic V. A review of SEM and TEM studies on the hybridisation of dentine. In: *Microscopy: Science, Technology, Applications and Education*. 2011. p. 256-268.
19. Kharouf N, Crestey JB, Toledano C. Adhésif universel : effet de mode ou adhésif d'avenir ? *Réalités Cliniques*. 13 nov 2023;34(4):6-16.
20. Van Meerbeek B, Yoshihara K, Van Landuyt K, Yoshida Y, Peumans M. From Buonocore's Pioneering Acid-Etch Technique to Self-Adhering Restoratives. A Status Perspective of Rapidly Advancing Dental Adhesive Technology. *J Adhes Dent*. 2020;22(1):7-34.
21. Lehmann N. Dégradation du joint collé à l'interface adhésif/dent : données scientifiques et moyens de prévention. *Réalités Cliniques*. 14 nov 2023;34(4):52-61.
22. Ilie N. Degradation of Dental Methacrylate-Based Composites in Simulated Clinical Immersion Media. *J Funct Biomater*. 28 févr 2022;13(1):25.
23. Hashimoto M, Tay FR, Ohno H, Sano H, Kaga M, Yiu C, et al. SEM and TEM analysis of water degradation of human dentinal collagen. *J Biomed Mater Res B Appl Biomater*. 15 juill 2003;66(1):287-98.
24. Tay FR, Pashley DH. Dental adhesives of the future. *J Adhes Dent*. 2002;4(2):91-103.
25. Hashimoto M. A review--micromorphological evidence of degradation in resin-dentin bonds and potential preventional solutions. *J Biomed Mater Res B Appl Biomater*. janv 2010;92(1):268-80.
26. Hashimoto M, Ohno H, Kaga M, Endo K, Sano H, Oguchi H. In vivo degradation of resin-dentin bonds in humans over 1 to 3 years. *J Dent Res*. juin 2000;79(6):1385-91.
27. Hashimoto M, Ohno H, Endo K, Kaga M, Sano H, Oguchi H. The effect of hybrid layer thickness on bond strength: demineralized dentin zone of the hybrid layer. *Dent Mater*. nov 2000;16(6):406-11.
28. Park JG, Ye Q, Topp EM, Misra A, Spencer P. Water sorption and dynamic mechanical properties of dentin adhesives with a urethane-based multifunctional methacrylate monomer. *Dent Mater*. déc 2009;25(12):1569-75.

29. Malacarne J, Carvalho RM, de Goes MF, Svizero N, Pashley DH, Tay FR, et al. Water sorption/solubility of dental adhesive resins. *Dent Mater.* oct 2006;22(10):973-80.
30. Ito S, Hashimoto M, Wadgaonkar B, Svizero N, Carvalho RM, Yiu C, et al. Effects of resin hydrophilicity on water sorption and changes in modulus of elasticity. *Biomaterials.* nov 2005;26(33):6449-59.
31. Abdalla AI, Feilzer AJ. Four-year water degradation of a total-etch and two self-etching adhesives bonded to dentin. *Journal of Dentistry.* 1 août 2008;36(8):611-7.
32. Nogueira P, Ramírez C, Torres A, Abad MJ, Cano J, López J, et al. Effect of water sorption on the structure and mechanical properties of an epoxy resin system. *Journal of Applied Polymer Science.* 2001;80(1):71-80.
33. Ortengren U, Wellendorf H, Karlsson S, Ruyter IE. Water sorption and solubility of dental composites and identification of monomers released in an aqueous environment. *J Oral Rehabil.* déc 2001;28(12):1106-15.
34. Mulligan S, Hatton PV, Martin N. Resin-based composite materials: elution and pollution. *Br Dent J.* mai 2022;232(9):644-52.
35. Frassetto A, Breschi L, Turco G, Marchesi G, Di Lenarda R, Tay FR, et al. Mechanisms of degradation of the hybrid layer in adhesive dentistry and therapeutic agents to improve bond durability--A literature review. *Dent Mater.* févr 2016;32(2):e41-53.
36. Coutinho E, Cardoso MV, Fernandes CP, Neves AA, Gouvea CVD, Van Landuyt KL, et al. Nanoleakage distribution at adhesive-dentin interfaces in 3D. *J Dent Res.* août 2011;90(8):1019-25.
37. Hashimoto M, Yamaguchi S, Imazato S. Nanoleakage and Durability of Resin/Dentin Bonds. *Curr Oral Health Rep.* 1 déc 2015;2(4):195-201.
38. Hashimoto M, Tay FR, Sano H, Kaga M, Pashley DH. Diffusion-induced water movement within resin-dentin bonds during bonding. *J Biomed Mater Res B Appl Biomater.* nov 2006;79(2):453-8.
39. Wang Y, Guo X, Yao X, Hass V. Mapping water and monomer gradients in the adhesive/dentin interface with confocal micro-Raman imaging. *Dental Materials.* 1 avr 2025;41(4):473-81.
40. Tjäderhane L, Nascimento FD, Breschi L, Mazzoni A, Tersariol ILS, Geraldini S, et al. Optimizing dentin bond durability: control of collagen degradation by matrix metalloproteinases and cysteine cathepsins. *Dent Mater.* janv 2013;29(1):116-35.
41. Somerville R, Oblander S, Apte S. Matrix metalloproteinases: Old dogs with new tricks. *Genome Biology.* 29 mai 2003;4(6):216.
42. Pashley DH, Tay FR, Yiu C, Hashimoto M, Breschi L, Carvalho RM, et al. Collagen degradation by host-derived enzymes during aging. *J Dent Res.* mars 2004;83(3):216-21.

43. Carrilho MRO, Carvalho RM, de Goes MF, di Hipólito V, Geraldini S, Tay FR, et al. Chlorhexidine preserves dentin bond in vitro. *J Dent Res.* janv 2007;86(1):90-4.
44. Hebling J, Pashley DH, Tjäderhane L, Tay FR. Chlorhexidine arrests subclinical degradation of dentin hybrid layers in vivo. *J Dent Res.* août 2005;84(8):741-6.
45. Carrilho MR, Tay FR, Donnelly AM, Agee KA, Tjäderhane L, Mazzoni A, et al. Host-derived Loss of Dentin Matrix Stiffness Associated with Solubilization of Collagen. *J Biomed Mater Res B Appl Biomater.* juill 2009;90(1):373-80.
46. Gorgieva S, Kokol V, Gorgieva S, Kokol V. Collagen- vs. Gelatine-Based Biomaterials and Their Biocompatibility: Review and Perspectives. In: *Biomaterials Applications for Nanomedicine.* IntechOpen; 2011.
47. Guo X, Yu Y, Gao S, Zhang Z, Zhao H. Biodegradation of Dental Resin-Based Composite-A Potential Factor Affecting the Bonding Effect: A Narrative Review. *Biomedicines.* 18 sept 2022;10(9):2313.
48. Finer Y, Jaffer F, Santerre JP. Mutual influence of cholesterol esterase and pseudocholinesterase on the biodegradation of dental composites. *Biomaterials.* mai 2004;25(10):1787-93.
49. Shokati B, Tam LE, Santerre JP, Finer Y. Effect of salivary esterase on the integrity and fracture toughness of the dentin-resin interface. *J Biomed Mater Res B Appl Biomater.* juill 2010;94(1):230-7.
50. Cai K, Delaviz Y, Banh M, Guo Y, Santerre JP. Biodegradation of composite resin with ester linkages: identifying human salivary enzyme activity with a potential role in the esterolytic process. *Dent Mater.* août 2014;30(8):848-60.
51. Oskoe SK, Drummond JL, Rockne KJ. The effect of esterase enzyme on aging dental composites. *J Biomed Mater Res B Appl Biomater.* août 2019;107(6):2178-84.
52. Kermanshahi S, Santerre JP, Cvitkovitch DG, Finer Y. Biodegradation of resin-dentin interfaces increases bacterial microleakage. *J Dent Res.* sept 2010;89(9):996-1001.
53. Delaviz Y, Finer Y, Santerre JP. Biodegradation of resin composites and adhesives by oral bacteria and saliva: A rationale for new material designs that consider the clinical environment and treatment challenges. *Dental Materials.* janv 2014;30(1):16-32.
54. Bourbia M, Ma D, Cvitkovitch DG, Santerre JP, Finer Y. Cariogenic bacteria degrade dental resin composites and adhesives. *J Dent Res.* nov 2013;92(11):989-94.
55. Sadeghinejad L, Cvitkovitch DG, Siqueira WL, Merritt J, Santerre JP, Finer Y. Mechanistic, Genomic and Proteomic Study on the Effects of BisGMA-derived Biodegradation Product on Cariogenic Bacteria. *Dent Mater.* févr 2017;33(2):175-90.
56. Khalichi P, Cvitkovitch DG, Santerre JP. Effect of composite resin biodegradation products on oral streptococcal growth. *Biomaterials.* nov 2004;25(24):5467-72.

57. Khalichi P, Singh J, Cvitkovitch DG, Santerre JP. The influence of triethylene glycol derived from dental composite resins on the regulation of *Streptococcus mutans* gene expression. *Biomaterials*. févr 2009;30(4).
58. Marashdeh MQ, Gitalis R, Levesque C, Finer Y. *Enterococcus faecalis* Hydrolyzes Dental Resin Composites and Adhesives. *J Endod*. avr 2018;44(4):609-13.
59. Gregson KS, Shih H, Gregory RL. The impact of three strains of oral bacteria on the surface and mechanical properties of a dental resin material. *Clin Oral Investig*. août 2012;16(4):1095-103.
60. Da Silva EM, Gonçalves L, Guimarães JGA, Poskus LT, Fellows CE. The diffusion kinetics of a nanofilled and a midifilled resin composite immersed in distilled water, artificial saliva, and lactic acid. *Clin Oral Investig*. juin 2011;15(3):393-401.
61. Zhu L, Li Y, Carrera C, Chen YC, Li M, Fok A. Calibration of a lactic-acid model for simulating biofilm-induced degradation of the dentin-composite interface. *Dent Mater*. nov 2017;33(11):1315-23.
62. Gitalis R, Zhou L, Marashdeh MQ, Sun C, Glogauer M, Finer Y. Human neutrophils degrade methacrylate resin composites and tooth dentin. *Acta Biomater*. 1 avr 2019;88:325-31.
63. Gitalis R, Bae JH, Preston M, Patel M, Liu Z, Sun C, et al. Human neutrophils compromise the restoration-tooth interface. *Acta Biomater*. nov 2020;117:283-93.
64. Soares CJ, Faria-E-Silva AL, Rodrigues M de P, Vilela ABF, Pfeifer CS, Tantbirojn D, et al. Polymerization shrinkage stress of composite resins and resin cements - What do we need to know? *Braz Oral Res*. 28 août 2017;31(suppl 1):e62.
65. Yoshikawa T, Sano H, Burrow MF, Tagami J, Pashley DH. Effects of dentin depth and cavity configuration on bond strength. *J Dent Res*. avr 1999;78(4):898-905.
66. Ferracane JL. Buonocore Lecture. Placing dental composites--a stressful experience. *Oper Dent*. 2008;33(3):247-57.
67. Kurokawa R, Finger WJ, Hoffmann M, Endo T, Kanehira M, Komatsu M, et al. Interactions of self-etch adhesives with resin composites. *J Dent*. déc 2007;35(12):923-9.
68. Peutzfeldt A, Asmussen E. Determinants of in vitro gap formation of resin composites. *J Dent*. févr 2004;32(2):109-15.
69. Borkowski K, Kotousov A, Kahler B. Effect of material properties of composite restoration on the strength of the restoration-dentine interface due to polymerization shrinkage, thermal and occlusal loading. *Med Eng Phys*. juill 2007;29(6):671-6.
70. Cook WD, Forrest M, Goodwin AA. A simple method for the measurement of polymerization shrinkage in dental composites. *Dent Mater*. nov 1999;15(6):447-9.

71. Calheiros FC, Sadek FT, Braga RR, Cardoso PEC. Polymerization contraction stress of low-shrinkage composites and its correlation with microleakage in class V restorations. *J Dent.* juill 2004;32(5):407-12.
72. Dionysopoulos D, Koliniotou-Koumpia E. SEM Evaluation of Internal Adaptation of Bases and Liners under Composite Restorations. *Dentistry Journal.* juin 2014;2(2):52-64.
73. Arola D. Fatigue testing of biomaterials and their interfaces. *Dent Mater.* avr 2017;33(4):367-81.
74. Mutluay MM, Yahyazadefar M, Ryou H, Majd H, Do D, Arola D. Fatigue of the Resin-Dentin Interface: A New Approach for Evaluating the Durability of Dentin Bonds. *Dent Mater.* avr 2013;29(4):437-49.
75. Zhang Z, Beitzel D, Majd H, Mutluay M, Tezvergil-Mutluay A, Tay FR, et al. Fatigue resistance of dentin bonds prepared with two vs three step adhesives : effect of carbodiimide. *Dent Mater.* déc 2017;33(12):1340-50.
76. Huang MS, Li MT, Huang FM, Ding SJ. The effect of thermocycling and dentine pre-treatment on the durability of the bond between composite resin and dentine. *J Oral Rehabil.* mai 2004;31(5):492-9.
77. El-Araby AM, Talic YF. The effect of thermocycling on the adhesion of self-etching adhesives on dental enamel and dentin. *J Contemp Dent Pract.* 1 févr 2007;8(2):17-24.
78. Sangwichit K, Kingkaew R, Pongprueksa P, Senawongse P. Effect of thermocycling on the durability of etch-and-rinse and self-etch adhesives on dentin. *Dent Mater J.* 2016;35(3):360-8.
79. Gary A. Universal Adhesives: The Next Evolution in Adhesive Dentistry? *Compendium.* 15 janv 2015;36(1).
80. Wendlinger M, Pomacóndor-Hernández C, Pintado-Palomino K, Cochinski GD, Loguercio AD. Are universal adhesives in etch-and-rinse mode better than old 2-step etch-and-rinse adhesives? One-year evaluation of bonding properties to dentin. *J Dent.* mai 2023;132:104481.
81. Hurtado A, Fuentes V, Cura M, Tamayo A, Ceballos L. Long-Term In Vitro Adhesive Properties of Two Universal Adhesives to Dentin. *Materials (Basel).* 28 avr 2023;16(9):3458.
82. Hanabusa M, Mine A, Kuboki T, Momoi Y, Van Ende A, Van Meerbeek B, et al. Bonding effectiveness of a new 'multi-mode' adhesive to enamel and dentine. *Journal of Dentistry.* 1 juin 2012;40(6):475-84.
83. Nagarkar S, Theis-Mahon N, Perdigão J. Universal dental adhesives: Current status, laboratory testing, and clinical performance. *J Biomed Mater Res B Appl Biomater.* août 2019;107(6):2121-31.
84. Zhang Z yi, Tian F cong, Niu L na, Ochala K, Chen C, Fu B ping, et al. Defying ageing: An expectation for dentine bonding with universal adhesives? *J Dent.* févr 2016;45:43-52.

85. Cuevas-Suárez CE, da Rosa WL de O, Lund RG, da Silva AF, Piva E. Bonding Performance of Universal Adhesives: An Updated Systematic Review and Meta-Analysis. *J Adhes Dent.* 2019;21(1):7-26.
86. François P, Ceinos R, Goff SL, Abdel-Gawad S, Troizier-Cheyne M, Fasham T, et al. Nouveaux adhésifs, nouveaux matériaux, nouvelles colles. *L'Information Dentaire.* 27 sept 2023;(32):52-62.
87. Polesso Patias M, Fernandes-E-Silva P, Carreño NLV, Lund RG, Piva E, da Silva AF, et al. Comparative clinical performance of universal adhesives versus etch-and-rinse and self-etch adhesives: a meta-analysis. *Clin Oral Investig.* 25 juin 2025;29(7):352.
88. Elkaffas AA, Hamama HHH, Mahmoud SH. Do universal adhesives promote bonding to dentin? A systematic review and meta-analysis. *Restor Dent Endod.* 18 juin 2018;43(3):e29.
89. Oz FD, Ergin E, Canatan S. Twenty-four-month clinical performance of different universal adhesives in etch-and-rinse, selective etching and self-etch application modes in NCCL - a randomized controlled clinical trial. *J Appl Oral Sci.* 2019;27:e20180358.
90. Rosa WL de O da, Piva E, Silva AF da. Bond strength of universal adhesives: A systematic review and meta-analysis. *J Dent.* juill 2015;43(7):765-76.
91. Maciel Pires P, Dávila-Sánchez A, Faus-Matoses V, Nuñez Martí JM, Lo Muzio L, Sauro S. Bonding performance and ultramorphology of the resin-dentine interface of contemporary universal adhesives. *Clin Oral Investig.* juin 2022;26(6):4391-405.
92. Yoshihara K, Yoshida Y, Hayakawa S, Nagaoka N, Irie M, Ogawa T, et al. Nanolayering of phosphoric acid ester monomer on enamel and dentin. *Acta Biomater.* août 2011;7(8):3187-95.
93. Caussin É, François P. Le nano-assemblage, parce qu'une image vaut mille mots.... *Bio-matériaux Cliniques.* mars 2022;7(1):85.
94. Raux F. Faisons le point sur l'adhésion en 2019. *L'Information Dentaire.* 3 juill 2019;(25):24-7.
95. Nonato R de F, Moreira PH de A, Silva D de O da, Ferreira MWC de, Reis A, Cardenas AFM, et al. Long-term Evaluation of Bonding Performance of Universal Adhesives based on Different Dentinal Moisture Levels. *J Adhes Dent.* 8 nov 2022;24:395-406.
96. Stape THS, Wik P, Mutluay MM, Al-Ani AAS, Tezvergil-Mutluay A. Selective dentin etching: A potential method to improve bonding effectiveness of universal adhesives. *J Mech Behav Biomed Mater.* oct 2018;86:14-22.
97. Lezaja Zebic M, Dzeletovic B, Miletic V. Microtensile bond strength of universal adhesives to flat versus Class I cavity dentin with pulpal pressure simulation. *J Esthet Restor Dent.* mai 2018;30(3):240-8.

98. Kaczor K, Gerula-Szymańska A, Smektała T, Safranow K, Lewusz K, Nowicka A. Effects of different etching modes on the nanoleakage of universal adhesives: A systematic review and meta-analysis. *J Esthet Restor Dent*. juill 2018;30(4):287-98.
99. Wang R, Shi Y, Li T, Pan Y, Cui Y, Xia W. Adhesive interfacial characteristics and the related bonding performance of four self-etching adhesives with different functional monomers applied to dentin. *J Dent*. juill 2017;62:72-80.
100. Muñoz MA, Luque-Martinez I, Malaquias P, Hass V, Reis A, Campanha NH, et al. In vitro longevity of bonding properties of universal adhesives to dentin. *Oper Dent*. 2015;40(3):282-92.
101. Brkanović S, Sever EK, Vukelja J, Ivica A, Miletić I, Krmek SJ. Comparison of Different Universal Adhesive Systems on Dentin Bond Strength. *Materials (Basel)*. 12 févr 2023;16(4):1530.
102. Tsujimoto A, Fischer NG, Barkmeier WW, Latta MA. Bond Durability of Two-Step HEMA-Free Universal Adhesive. *J Funct Biomater*. 29 août 2022;13(3):134.
103. Dental adhesives and adhesive performance. In: *Dental Biomaterials : Imagine, Testing and Modeling*. 2008. p. 81-111.
104. Kasahara Y, Takamizawa T, Hirokane E, Tsujimoto A, Ishii R, Barkmeier WW, et al. Comparison of different etch-and-rinse adhesive systems based on shear fatigue dentin bond strength and morphological features the interface. *Dent Mater*. mars 2021;37(3):e109-17.
105. Amin F, Fareed MA, Zafar MS, Khurshid Z, Palma PJ, Kumar N. Degradation and Stabilization of Resin-Dentine Interfaces in Polymeric Dental Adhesives: An Updated Review. *Coatings*. 1 août 2022;12(8):1094.

Table des illustrations :

Figure 1 : Schéma d'une coupe de dentine représentant la dentine circumpulpaire. PD : Prédentine, OB : Odontoblastes, PTD : Dentine Pérítubulaire [5].	19
Figure 2 : Schéma d'une coupe de dent représentant la dentine circumpulpaire [3].	19
Figure 3 : Schéma d'une coupe de dent représentant la dentine primaire et secondaire [3].	20
Figure 4 : Schéma d'une coupe de dent représentant la dentine tertiaire (réactionnelle et réparatrice) [3].	21
Figure 5 : Schéma illustrant les principales étapes de la polymérisation [10].	22
Figure 6 : Aspect de la dentine déminéralisée après rinçage et avant séchage [15].	23
Figure 7 : Image électronique des deux porosités de la dentine déminéralisée [8].	23
Figure 8 : Aspect de la dentine mordancée après rinçage et séchage. L'eau contenue dans les espaces inter-fibrillaires est évaporée, ce qui conduit au collapsus du collagène [15].	24
Figure 9 : Illustration schématique de la formation de la couche hybride dans le cas d'un système M&R [8].	25
Figure 10 : Interface dentine-adhésif observée en Microscopie électronique à balayage d'un système M&R3. A : Adhésif; H : Couche hybride; D : Dentine; T : Bride d'ancrage [15].	25
Figure 11 : Schéma synthétisant le protocole de collage des systèmes M&R [15]	26
Figure 12 : Interface dentine-adhésif observée en Microscopie électronique à balayage d'un SAM1. CH : Couche hybride ; B : Bride d'ancrage [15].	27
Figure 13 : Schéma synthétisant le protocole de collage des systèmes auto-mordançants [15].	28
Figure 14 : Récapitulatif des différents systèmes adhésifs	29
Figure 15 : Images MEB d'une coupe de dent au niveau de la couche hybride. (a) : Échantillon test in vitro après 24H de collage. (c) : Échantillon placé in vivo dans un environnement buccal humain pendant 2 ans, montrant l'altération structurale des fibrilles de collagène. H : couche hybride; B : Résine adhésive [25].	32
Figure 16 : Photomicrographies MEB obtenues par tomographie FIB après alignement, segmentation et reconstruction du modèle (volume total d'environ $25 \times 25 \times 25 \mu\text{m}^3$), illustrant les water trees (en rouge) et l'enveloppe externe de la dentine non affectée et des tubules dentinaires (en jaune). Ag(s) : Nitrate d'argent ; Hy : Couche hybride ; T(s) : Tubules dentinaires ; M : Matrice adhésive ; F : charges adhésives ; Ud : Dentine non affectée [36].	35
Figure 17 : Schéma explicatif du "Cysteine Switch" [41].	38
Figure 18 : Image MET de dentine mordancée à l'acide incubée dans la salive artificielle pendant 250 jours. CM : Collagène déminéralisée ; D : Dentine. E : Résine époxy. [42].	39
Figure 19 : Image MET de dentine mordancée à l'acide incubée dans de la salive artificielle contenant des inhibiteurs de protéases pendant 250 jours. CM : Collagène déminéralisée ; D : Dentine ; E : résine époxy ; T : Tubule dentinaire. [42].	39

Figure 20 : Image MEB représentant une coupe au niveau de la couche hybride après 6 mois de conservation dans la salive artificielle sans (A) et avec inhibiteur de protéases (B) [43].	40
Figure 21 : Analyse TEM de la couche hybride de molaires primaires restaurées 6 mois auparavant, sans (groupe témoin) et avec pré-traitement à la Chlorhexidine 2% après coloration à l'acide phosphotungstique et à l'acétate d'uranyle. H : Couche Hybride. D : Dentine. C : Composite. A : Adhésif. [44].	41
Figure 22 : Analyse TEM de la couche hybride de molaires primaires restaurées 6 mois auparavant, sans (groupe témoin) et avec pré-traitement à la Chlorhexidine 2% après imprégnation au nitrate d'argent. A : Adhésif ; H : Couche hybride ; D : Dentine ; C : résine composite ; P : Copolymères d'acide polyalcénoïque. [44].	41
Figure 23 : Cathepsine B dans les tubules dentinaires. Coupe transversale du tissu dentinaire visualisée par contraste interférentiel différentiel (DIC) (A). La cathepsine B intratubulaire a été immunomarquée à l'aide d'un anticorps primaire anti-cathepsine B humaine de lapin et d'un anticorps secondaire anti-IgG de lapin de souris conjugué à l'Alexa Fluor 594® dans le canal rouge (B). Images fusionnées (C). T : Tubules. [40]	42
Figure 24 : Schéma représentant la triple hélice du collagène et ses extrémités appelées télépeptides [46].	43
Figure 25 : Micrographies électroniques à balayage d'adhésif M&R (SB) et auto-mordant (EB) au jour 0 (d, g), après 30 jours d'incubation dans des flacons stériles contenant une infusion cerveau-cœur (e, h) et contenant des S.Mutans (f, i) [54].	45
Figure 26 : Schéma illustrant la dégradation de l'interface dentine-résine adhésive par les neutrophiles du sillon subgingival [62].	47
Figure 27 : Schéma synthétisant le processus de biodégradation. CTs : Cathepsines [47].	48
Figure 28 : Image MEB montrant une micro-fissure entre la dentine et un système adhésif Clearfil Tri-S Bond (SAM 1) et un composite Clearfil Majesty [72].	51
Figure 29 : Images MEB d'échantillons de dentine coronaire collée à un composite de résine commercial après rupture par fatigue. (d) : Interface collée d'un échantillon témoin (non soumis à une charge cyclique). Aucun signe de dégradation n'est visible. (e) : Interface collée restante d'un échantillon soumis à la fatigue, montrant des microfissures dans la couche adhésive et la couche hybride (flèches) [74].	52
Figure 30 : Images MEB à fort grossissement des surfaces de fracture résultant de la propagation des fissures de fatigue après 6 mois de vieillissement. (a) : échantillon SB (Single Bond, M&R2). (b) échantillon SBMP (ScotchBond Multipurpose, M&R3) [75].	53
Figure 31 : Images MEB (x 1000) des interfaces résine-dentine des adhésifs de mordant et de rinçage avec et sans thermocyclage (La structure entre les flèches représente les couches hybrides) [78].	55
Figure 32 : Images MEB (x 3500) des interfaces résine-dentine des adhésifs auto-mordants avec et sans thermocyclage (La structure entre les flèches représente les couches hybrides) [78].	55
Figure 33 : Schéma de la majorité des adhésifs universels présents sur le marché en fonction de leur acidité [86].	58

Figure 34 : Formule chimique du monomère fonctionnel 10-MDP (partie rouge : groupement fonctionnel phosphate ; partie bleue : groupement espaceur, partie verte : groupement méthacrylate) [19].	61
Figure 35 : Mécanisme de nano-assemblage du 10-MDP avec le calcium [93].	61
Figure 36 : Classement des différents adhésifs universels en fonction de leur valeur d'adhérence immédiate (issu de la bataille de l'adhésion de 2019) [94].	63
Figure 37 : Analyse fractographique MEB des échantillons testés après 10 mois de vieillissement en salive artificielle. A : Clearfill Universal Quick Bond (CBS) en mode M&R. B : CBQ en mode AM. C : Scotchbond Universal (SCH) en mode M&R. D : SCH en mode AM. E : Prime and Bond Active (PBA) en mode M&R. F : PBA en mode AM. G : ZipBond X (ZBX) en mode M&R. H : ZBX en mode AM. Dt : Tubules dentinaires ; rt : Tags résineux. [91].	65
Figure 38 : Classement des différents adhésifs universels en fonction de leur valeur d'adhérence mettant en évidence les monomères fonctionnels qu'ils contiennent (issu de la bataille de l'adhésion de 2019) [94].	67

Table des tableaux :

Tableau 1 : Tableau récapitulatif des différents modes de dégradation chimique de l'interface dentine-résine adhésive.	36
Tableau 2 : Tableau récapitulatif des différents modes de dégradation biologique de l'interface dentine- résine adhésive.	49
Tableau 3 : Tableau récapitulatif des différents modes de dégradation physique de l'interface dentine-résine adhésive.	56

Thèse d'exercice : Chir. Dent. : Lille : Année 2026 –

Mécanisme de dégradation de l'interface dentine - résine adhésive, rôle des adhésifs universels dans la durabilité de cette interface
/ **Inès DESREUMAUX**. - p. 84 : ill.38 ; tabl.3; réf. 105.

Domaines : Dentisterie restauratrice – Odontologie conservatrice – Biomatériaux dentaires

Mots clés Libres : Adhésion dentinaire, Couche hybride, Collage, Vieillissement adhésif, Dégradation de l'interface, Hydrolyse, Nanoleakage, Adhésifs universels

Résumé en français

L'adhésion à la dentine constitue un enjeu central de la dentisterie restauratrice contemporaine, d'autant plus important dans un contexte de disparition des amalgames au profit des restaurations adhésives. Contrairement à l'émail, la dentine est un tissu hydraté, hétérogène et biologiquement actif, rendant l'interface dentine-résine plus complexe et plus vulnérable au vieillissement. Ce travail analyse les mécanismes de formation de la couche hybride ainsi que les principaux processus de dégradation chimique, biologique et physique susceptibles d'en compromettre la durabilité. Une attention particulière est portée aux adhésifs universels, dont la composition et les stratégies d'application influencent la stabilité de la liaison dentine-résine au cours du vieillissement. À la lumière des données scientifiques récentes, ce travail discute leur capacité à limiter certains mécanismes de dégradation et à améliorer la longévité clinique des restaurations collées. Cette analyse met en évidence la nécessité d'une compréhension fine des interactions physico-chimiques et biologiques à l'interface dentinaire afin d'optimiser la durabilité des thérapeutiques adhésives.

JURY :

Président : Monsieur le Pr Lieven ROBBERECHT

Assesseurs : Monsieur le Dr Marc LINEZ

Monsieur le Dr Henri PERSOON

Monsieur le Dr Florian DE CONINCK