A la recherche du fractionnement isotopique indépendant de la masse : le rôle des plasmas.

François ROBERT, CNRS - Muséum National d'Histoire Naturelle - Sorbonne Université.

Les premiers doutes sur le caractère général de la théorie du fractionnement isotopique dépendant de la masse (MDF) sont apparus en 1983 avec la synthèse de l'ozone(1). Les isotopes de l'oxygène sont souvent utilisés pour illustrer le MDF : une variation relative de 1% du rapport isotopique 17O/16O doit s'accompagner de 2% du rapport 18O/16O car la différence de masse entre 18O et 16O est le double de celle entre 17O et 16O. L'origine de la MDF est ancrée dans les principes les plus fondamentaux de la mécanique quantique Elle est omniprésente, observée pour les réactions d'échange isotopique et pour les réactions chimiques à 2 corps. Elle a été théorisée en 1947 par H. Urey(2).

A l’inverse, l'ozone résulte d'une réaction à 3 corps (O+O2+M → O3+ M où M est le troisième corps stabilisant le complexe intermédiaire O3\*) et présente des variations relatives égales pour les rapports 17O/16O et 18O/16O (appelé *effet MIF*). Ce résultat reproduit les variations observées dans les météorites(3) et plus généralement dans l'ensemble du système solaire. Tout comme l'origine physique de l'effet MIF est encore une question ouverte en mécanique quantique, son application possible à la formation du système solaire est difficile à juger.

Le séminaire sera divisé en 3 parties : (1) théorique, (2) expérimentale et (3) analytique. Dans la partie (1), je montrerai que les résultats sur l'ozone peuvent être reproduits numériquement si l'exigence fondamentale de la mécanique quantique selon laquelle, pour des isotopes *indistinguables*, les deux voies de réactions possibles (diffusion élastique et échange de particules, c'est-à-dire échange isotopique et non-échange) sont *superposées*(4,5). Dans la partie (2), j'expliquerai comment les équations qui régissent l'effet dans l'ozone nous ont conduit à envisager des expériences de condensation dans les plasmas. La partie (3) est consacrée aux résultats obtenus pour les isotopes du Ti, Mg, O et N en utilisant des mélanges de TiCl4+Pentane, MgCl3+Pentanol et CO2 ou N2O+Pentane(6,7). La résolution spatiale exceptionnelle de la NanoSims a révélé d’importants fractionnements isotopiques indépendant de la masse pour tous ces éléments (de l'ordre de 1000 à 10,000‰) dans des particules carbonées de taille micrométrique.

Ces résultats sont raisonnablement bien expliqués par le modèle construit pour l'ozone. Ils impliquent que les effets MIF deviennent des candidats sérieux pour expliquer l'origine des solides dans le système solaire. Ils doivent néanmoins être documentés expérimentalement dans des conditions physiques et chimiques proches de celles modélisées en cosmochimie.

(1) M.H. Thiemens, J.E. Heidenreich III, *Science* **219** (1983) 1073–1075. (2) H.C. Urey, J. Am. Chem. Soc. **15** (1947) 562–581 (3) R.N. Clayton, L. Grossman, T.K. Mayeda, *Science* **182** (1973) 485–488. (4) P. Reinhardt, F. Robert, *Chem. Phys.* **513** (2018) 287–294. (5) F. Robert, P. Reinhardt. *Chem. Phys. Impact* **4**, (2022) 100073. (6) F. Robert, M. Chaussidon, A. Gonzalez-Cano, S. Mostefaoui, PNAS **118** (2021) 52. (7) F. Robert, R. Tartese, G. Lombardi, P. Reinhardt, M. Roskosz, B. Doisneau, Z. Deng, M. Chaussidon, *Nat. Astron* **4** (2020) 762–768.