



Thèse de doctorat

# Etude théorique des effets relativistes induits par une impulsion lumineuse ultra-rapide dans la matière

Yannick Hinschberger Schreiber

## Membres du Jury

*Rapporteur externe :* **Mustapha Maamache**

*Rapporteur externe :* **Jacques Robert**

*Examineur externe :* **Denis Ledue**

*Examineur externe :* **François Reuse**

*Examineur interne :* **Jean-Yves Bigot**

*Directeur de thèse :* **Paul-Antoine Hervieux**

Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg



A qui de droit...

« Étonnant, non ? »

Pierre Desproges



« Si on en croit les résultats de cette équation, les électrons devraient avoir un goût de framboise. »

**H. J. Farnsworth**



## Remerciements

Je tiens à remercier chaleureusement Paul-Antoine grâce à qui j'ai pu vivre ces trois années charnières. Je remercie les membres du jury qui ont accepté de lire et d'évaluer ce travail. Je remercie également l'ensemble des personnes qui ont apporté leurs contributions et m'ont aidé à réaliser ce travail : Giovanni Manfredi, Omar Morandi, Anant Dixit et Nouredine Ferkouss, Jean-Yves Bigot, Mircea Vomir et Hélène Vonesch. ¶ Enfin, merci à mes parents, aux membres de ma famille et à mes amis ! ¶ Ala foi !

Version II. A suivre...



# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>i</b>
<b>1 Dynamique quantique relativiste à une particule</b>	<b>1</b>
1.1 Equation de Dirac	1
1.1.1 Electron libre	2
1.1.2 Electron en interaction avec un champ électromagnétique	5
1.1.3 Limite non-relativiste	9
1.2 Transformation de Foldy-Wouthuysen (TFW)	12
1.2.1 Intérêts et présentation	12
1.2.2 Procédure récursive de la TFW	17
1.2.3 Exemple au troisième ordre en $(1/m)$	19
1.2.4 Extension au cinquième ordre en $(1/m)$	21
1.3 Forme explicite du hamiltonien	24
1.3.1 Equation de Schrödinger-Pauli ordre par ordre	24
1.3.2 Couplage du spin avec le champ électromagnétique	30
1.3.3 Analyses et perspectives	32
1.4 Etude du couplage entre les degrés de liberté de spin et le champ électromagnétique	34
1.4.1 Couplage direct	34
1.4.2 Couplage indirect	37
1.4.3 Importance des termes directs en spectroscopie ultra-rapide	40
1.4.4 Domaine de validité de la TFW	42
1.5 Equations du mouvement	42
1.5.1 Hamiltonien dans le régime femto-seconde	43
1.5.2 Observable position	43
1.5.3 Observable impulsion	44
1.5.4 Observable de spin	48
<b>2 Dynamique quantique relativiste du problème à deux particules</b>	<b>49</b>
2.1 Lagrangiens et hamiltoniens du système	49
2.1.1 Lagrangien de Darwin	50
2.1.2 Hamiltonien de Breit	54
2.1.3 Hamiltonien de Breit-Pauli	54
2.1.4 Problématique liée à la présence d'un champ externe	57
2.2 TFW du hamiltonien de Breit	58
2.2.1 Choix d'une procédure	59
2.2.2 Etape 1 : Développement au troisième ordre en $1/m$	60
2.2.3 Etape 2 : Diagonalisation	65
2.2.4 Analyse et critique de la procédure	69
2.3 Forme explicite du hamiltonien au second ordre en $1/m$	71
2.3.1 Règles de calcul et méthodologie	71

2.3.2	Opérateur de Coulomb . . . . .	73
2.3.3	Opérateur de Gaunt . . . . .	74
2.3.4	Opérateur de Jauge . . . . .	77
2.3.5	Contribution de l'ensemble des termes : le hamiltonien de Breit-Pauli . . . . .	81
2.4	Forme explicite du hamiltonien au troisième ordre en $1/m$ : influence du champ externe	83
2.4.1	Prérequis . . . . .	84
2.4.2	Opérateur de Coulomb . . . . .	85
2.4.3	Opérateur de Gaunt . . . . .	86
2.4.4	Opérateur de Jauge . . . . .	88
2.4.5	Résultats et analyse . . . . .	91
2.5	Intérêts et bases d'un développement au quatrième ordre en $1/m$ . . . . .	95
2.5.1	Problématique . . . . .	95
2.5.2	Lagrangien de Darwin au quatrième ordre en $1/c$ . . . . .	96
<b>3</b>	<b>Dynamique quantique relativiste d'un système de <math>N</math> particules en interaction mutuelle</b>	<b>97</b>
3.1	Position du problème . . . . .	97
3.1.1	Potentiel électrostatique auto-cohérent . . . . .	98
3.1.2	Prise en compte des interactions magnétiques . . . . .	99
3.1.3	Potentiels électromagnétiques . . . . .	101
3.1.4	Conséquences, questionnements et projets . . . . .	103
3.2	Développement des sources en puissance de $1/m$ . . . . .	105
3.2.1	Approche variationnelle . . . . .	105
3.2.2	Equation de continuité . . . . .	110
3.2.3	Effets d'une transformation unitaire sur l'expression des sources quantiques . . . . .	116
3.3	Théorie de champ moyen dans le formalisme de Dirac . . . . .	119
3.3.1	Equations auto-cohérentes . . . . .	119
3.3.2	Hamiltonien d'interaction rayonnement-matière . . . . .	120
3.3.3	Equations de Hartree-Breit . . . . .	120
3.3.4	Comparaison des deux méthodes . . . . .	123
3.4	Théorie de champ moyen semi-relativiste au second ordre en $1/m$ . . . . .	124
3.4.1	Equations auto-cohérentes . . . . .	124
3.4.2	Hamiltonien d'interaction rayonnement-matière . . . . .	125
3.4.3	Equations de Hartree-Breit-Pauli . . . . .	131
3.4.4	Comparaison des deux méthodes . . . . .	137
3.5	Prise en compte d'un champ externe dépendant du temps . . . . .	140
3.5.1	Formalisme quantique relativiste . . . . .	140
3.5.2	Formalisme à deux composantes . . . . .	141
<b>4</b>	<b>Eléments de magnéto-optique</b>	<b>145</b>
4.1	Effets Kerr et Faraday . . . . .	145
4.1.1	Présentation . . . . .	145
4.1.2	Polarisation de la lumière . . . . .	147
4.1.3	Indices optiques circulaires . . . . .	151
4.1.4	Expressions des phases Kerr et Faraday . . . . .	152
4.2	Modèles microscopiques . . . . .	155
4.2.1	Description classique : le modèle de Voigt . . . . .	156
4.2.2	Description quantique : l'importance du couplage spin-orbite . . . . .	158
4.2.3	Résumé et discussion sur la source d'anisotropie . . . . .	163
4.3	Désaimantation ultra-rapide . . . . .	164
4.3.1	Présentation . . . . .	164

4.3.2	Effet Kerr et Faraday résolus en temps . . . . .	166
4.3.3	Magnéto-optique non linéaire . . . . .	169
4.3.4	Magnéto-optique cohérente . . . . .	170
<b>5</b>	<b>Essais en magnéto-optique non linéaire</b>	<b>173</b>
5.1	Point de départ . . . . .	173
5.2	Modèle de Voigt non-linéaire . . . . .	175
5.3	Indices optiques non-linéaires . . . . .	177
5.3.1	Contribution de la polarisation non-linéaire . . . . .	177
5.3.2	Contribution du couplage spin-orbite et courant magnéto-optique . . . . .	180
5.4	Modélisation de la réponse magnéto-optique . . . . .	183
5.4.1	Principe . . . . .	183
5.4.2	Description du film de Nickel . . . . .	185
5.4.3	Détermination des éléments de tenseur . . . . .	186
5.5	Confrontation aux résultats expérimentaux . . . . .	190
5.5.1	Paramétrage . . . . .	190
5.5.2	Résultats . . . . .	193
5.5.3	Contribution du courant magnéto-optique . . . . .	195
5.5.4	Analyses et critiques . . . . .	199
<b>6</b>	<b>Dynamique d'aimantation</b>	<b>201</b>
6.1	Désaimantation ultra-rapide cohérente . . . . .	201
6.1.1	Contexte et problématique . . . . .	201
6.1.2	Origine(s) . . . . .	203
6.1.3	Couplage cohérent des spins avec le champ électromagnétique . . . . .	205
6.2	Effets des corrections relativistes sur un macro-spin . . . . .	208
6.2.1	Equations de Bloch . . . . .	209
6.2.2	Résolution . . . . .	210
6.2.3	Calcul de l'aimantation . . . . .	212
6.2.4	Résultats . . . . .	216
6.3	Effets de l'impulsion généralisée . . . . .	221
6.3.1	Moment orbital induit par le couplage entre le spin et le champ . . . . .	221
6.3.2	Fonction de Brillouin . . . . .	223
6.3.3	Résultats . . . . .	223
<b>A</b>	<b>Zitterbewegung</b>	<b>227</b>
<b>B</b>	<b>Transformation de Foldy-Wouthuysen</b>	<b>229</b>
<b>C</b>	<b>Dérivation des équations de Hartree</b>	<b>235</b>
<b>D</b>	<b>Polarisation de la lumière</b>	<b>239</b>
<b>E</b>	<b>Equations de Maxwell dans le formalisme de Dirac</b>	<b>243</b>
	<b>Conclusion</b>	<b>247</b>



# Introduction

Dans ce travail de thèse nous étudions l'importance des effets relativistes induits par une impulsion laser ultra-brève et intense dans le domaine de la matière condensée. L'utilisation d'impulsions laser femto-seconde ( $10^{-15}$ s) permet d'étudier l'interaction rayonnement-matière à des échelles de temps ultra-courtes et d'énergies lumineuses élevées. On cherche à savoir, si dans de telles conditions, les effets relativistes impliquant des champs externes dépendant du temps, conduisent à une modification conséquente des propriétés macroscopiques des phases solides, et en particulier des propriétés magnétiques. On appelle effet relativiste en matière condensée, les termes correctifs issus de la relativité restreinte qui comportent le facteur  $1/c$  dans les opérateurs hamiltoniens. En faisant tendre  $c$  vers l'infini on retrouve le hamiltonien usuel de Schrödinger-Pauli. La correction relativiste la plus connue est l'interaction spin-orbite; elle joue un rôle important dans les propriétés électroniques et magnétiques des solides.

Des expériences récentes [8] ont mis en évidence une désaimantation cohérente de films ferromagnétiques de Ni et de  $\text{CoPt}_3$  par une impulsion laser excitatrice de 48 fs. Les phénomènes observés s'étendent sur une dizaine de femto-seconde et "suivent" l'impulsion laser : l'effet est dit cohérent avec le champ électromagnétique. Ces observations sont à différencier de la désaimantation incohérente, observée à des temps plus longs (de l'ordre de la centaine de fs). Les mécanismes physiques conduisant à la perte d'aimantation d'un corps ferromagnétique font l'objet d'intenses recherches depuis une quinzaine d'années et ne sont toujours pas clairement compris à l'heure actuelle. Les phénomènes cohérents observés constituent une approche nouvelle pour étudier la dynamique d'aimantation induite par l'impulsion laser dans les toutes premières femto-seconde. Le développement prochain de la spectroscopie pompe-sonde atto-seconde ( $10^{-18}$ s) dans le domaine de la matière condensée permettra une étude beaucoup plus précise des processus d'interaction aux temps ultra-courts. Cette perspective suggère de considérer la variation temporelle de la source excitatrice comme un paramètre à part entière.

Les études expérimentales de la dynamique d'aimantation reposent sur les effets Kerr et Faraday magnéto-optiques résolus en temps. Ils permettent une étude indirecte de la dynamique d'aimantation par une mesure des grandeurs magnéto-optiques (rotation, ellipticité) du faisceau laser après interaction avec l'échantillon. Dans les ferromagnétiques, l'origine microscopique de l'effet Faraday est attribuée à l'interaction spin-orbite [61]. Les auteurs de la publication [8] ont proposé un mécanisme d'interaction relativiste entre les spins et le champ électromagnétique du laser pour expliquer les effets cohérents observés. Ainsi, l'effet magnéto-optique observé pourrait être attribué à une interaction spin-orbite impliquant le champ électrique de l'impulsion laser. Cette expérience constitue donc un exemple concret pour juger de la pertinence des effets relativistes, induits par un champ externe dépendant du temps.

Un des objectifs de ce travail est de développer des outils théoriques qui puissent décrire le com-

portement de la matière soumise à des impulsions électromagnétiques ultra-brèves et intenses. Il est important de comprendre quels sont les mécanismes physiques qui prédominent dans de telles conditions. Une étape clé dans la compréhension de ces processus, passe par la mise en place d'un modèle théorique qui soit capable d'incorporer l'interaction spin-orbite. Le but final est de pouvoir comparer l'importance du phénomène induit par le champ externe dépendant du temps, de celui créé par l'ensemble des constituants du solide. Il nous paraît également essentiel de replacer ces phénomènes dans leur contexte expérimental. Ainsi, l'étude menée dans cette thèse est développée selon deux axes. Le premier concerne l'étude fondamentale et exploratoire de l'aspect relativiste de l'interaction rayonnement-matière dans un cadre dépendant du temps. Le deuxième axe, plus proche de la réalité expérimentale, est consacré aux phénomènes magnéto-optiques et de désaimantation ultra-rapide.

La théorie relativiste de l'électron de Dirac constitue l'outil le plus fondamental pour décrire le spin et les aspects relativistes de l'interaction rayonnement-matière. L'équation de Dirac dans sa forme initiale, contient les degrés de liberté de l'électron mais aussi de son anti-particule, le positron. La diagonalisation du hamiltonien de Dirac (séparation de la matière et de l'anti-matière) permet d'obtenir les opérateurs hamiltoniens de l'équation habituelle de Schrödinger. Cette opération peut-être réalisée à l'aide de la transformation de Foldy-Wouthuysen (TFW). Ce développement est généralement réalisé au second ordre en  $1/m$  et permet de faire apparaître l'interaction spin-orbite [3, 4]. Nous avons découvert dans [12] une TFW du hamiltonien de Dirac réalisée au troisième ordre en  $1/m$  contenant des éléments impliquant un couplage entre le spin et la dérivée temporelle du champ électrique. Ce résultat ne peut être occulté dans une problématique où l'aspect temporellement variable du champ est un paramètre à prendre en compte. Ainsi, dans le premier chapitre, on propose de diagonaliser le hamiltonien de Dirac en présence d'un champ externe dépendant du temps jusqu'au cinquième ordre en  $1/m$ . On cherche à voir si cette procédure permet d'obtenir d'autres couplages entre les degrés de liberté de spin et le champ électromagnétique dépendant du temps.

Une façon plus juste pour décrire la réalité est de considérer le problème à deux électrons qui est la première étape vers la description du solide. Le hamiltonien d'interaction doit être du second ordre en  $1/m$  pour être cohérent avec le hamiltonien monoélectronique contenant l'interaction spin-orbite. Un tel hamiltonien existe, c'est le hamiltonien de Breit-Pauli. Il est obtenu en prenant la limite non relativiste du hamiltonien d'interaction quantique relativiste de Breit [10]. C'est un outil très performant car il introduit naturellement le couplage spin-orbite, le couplage spin-autre-orbite et les interactions dipolaires entre les charges et les spins. La séparation de la matière et de l'antimatière qui conduit au hamiltonien de Breit-Pauli au second ordre en  $1/m$  est généralement obtenu en l'absence de champ externe [19, 16, 17]. Nous proposons de regarder dans le second chapitre, si la diagonalisation du hamiltonien d'interaction de Breit en présence d'un champ électromagnétique dépendant du temps apporte des modifications sur le hamiltonien de Breit-Pauli. Compte tenu de l'influence apportée par le champ externe dans le cas à un électron, on réalise la procédure jusqu'au troisième ordre en  $1/m$ .

Il faut ensuite étudier l'impact des corrections relativistes pour un grand nombre de particules. Il est plutôt difficile d'incorporer les effets relativistes à l'ensemble d'une phase condensée car il s'agit d'un problème de physique du solide. La théorie des bandes d'énergies permet d'expliquer la plupart des propriétés macroscopiques des matériaux, mais on imagine la difficulté d'obtenir une structure de bande à partir de l'ensemble des termes correctifs et d'en étudier la modification par un champ externe dépendant du temps. Ainsi, pour décrire la matière de la façon la plus simple possible, on considère par exemple un système de  $N$  électrons en interaction. Ce concept abstrait peut toujours être utile pour décrire un gaz d'électrons polarisés en spin dans les solides ou les plasmas. Dans le troisième chapitre, on cherche à développer une théorie de champ moyen incorporant tous les effets relativistes

du second ordre en  $1/m$ , qui soit auto-cohérente avec les équations macroscopiques de Maxwell. Un tel modèle permettrait de réaliser des simulations numériques pour comparer les effets induits par le champ externe de ceux produits par les particules constituantes du solide.

Les interactions microscopiques que l'on cherche à décrire se rattachent macroscopiquement aux domaines de la magnéto-optique et de la désaimantation ultra-rapide. La désaimantation des systèmes ferromagnétiques par une impulsion laser femto-seconde a été découverte en 1996 par Jean-Yves Bigot et son équipe [34]. Elle représente aujourd'hui un domaine de recherche important, tant sur le plan théorique qu'expérimental. L'utilisation d'impulsions ultra-brèves et intenses permet d'atteindre les régimes de l'optique non-linéaire. L'énergie déposée est suffisamment importante pour perturber fortement les charges et les spins et induire une modification de l'aimantation. Les mécanismes physiques responsables de cette perte d'aimantation n'ont pas été établis à ce jour. Les expériences d'effets cohérents mises en oeuvre dans [8] apportent des renseignements intéressants sur les processus d'interaction rayonnement-matière aux temps "ultra-courts". Pour comprendre l'ensemble de cette thématique, on essaye d'aborder ces sujets à partir du concept de base de la magnéto-optique : les effets Kerr et Faraday. Ces derniers permettent une mesure de la composante anisotrope du tenseur de susceptibilité d'un matériau, qui est une grandeur proportionnelle à l'aimantation. D'un point de vue de la physique classique, cette anisotropie s'explique par la déviation des charges électroniques par le champ moléculaire de Weiss du matériau ferromagnétique [57]. En mécanique quantique, la source d'anisotropie est attribuée à l'interaction spin-orbite [60, 61, 66]. Il nous paraît important de rappeler ces points clés de magnéto-optique linéaire dans le quatrième chapitre, afin de définir un cadre pour discuter de deux expériences pertinentes présentées dans [8] qui s'inscrivent dans le domaine de la magnéto-optique non-linéaire cohérente.

La première expérience est une expérience de Faraday dans des régimes non-linéaires. Elle présente une évolution non-linéaire des grandeurs magnéto-optiques en fonction de l'intensité déposée par l'impulsion laser sur des échantillons ferromagnétiques de nickel et de  $\text{CoPt}_3$ . La réponse magnéto-optique est décrite par la différence de phase entre les modes circulaires droit (+) et gauche (−) composant le signal lumineux qui traverse la matière. Cette théorie d'optique linéaire ne peut pas être utilisée dans le cadre de [8] car elle ne comporte aucune information sur l'aspect non-linéaire de l'interaction. Dans le cinquième chapitre, on propose donc d'aborder ce phénomène en déterminant une expression mathématique pour décrire les indices optiques circulaires d'un milieu non-linéaire et anisotrope, afin de modéliser l'expérience précédente pour l'échantillon de Ni (plus simple que  $\text{CoPt}_3$ ) à l'aide de modèles classiques simples. Il est par exemple important de comprendre quelle est la part respective de la contribution des charges et de l'aimantation dans le phénomène non-linéaire observé.

La seconde expérience exposée dans [8] présente un signal de réponse magnétique en cohérence temporelle avec l'impulsion laser excitatrice (48 fs). C'est un résultat nouveau concernant le phénomène de désaimantation ultra-rapide aux temps courts. Ce phénomène de contrôle de l'aimantation par la lumière constitue une problématique nouvelle dans le domaine du femtomagnétisme. La complexité et la diversité des mécanismes physiques générant l'ordre des matériaux ferromagnétiques permettent d'envisager de nombreuses explications pour décrire la désaimantation cohérente. Les auteurs de [8] ont proposé que l'origine microscopique de ce phénomène cohérent provienne de l'interaction relativiste entre les spins et le champ électromagnétique du laser. Dans le dernier chapitre on tente de définir un cadre pour étudier la désaimantation cohérente. Les pistes sont multiples et le sujet ne sera évidemment pas épuisé dans ce travail. On essaye donc, dans une première approche, d'incorporer de façon cohérente les corrections relativistes à des modèles magnétiques simples et de regarder quelles modifications elles peuvent apporter.



# Chapitre 1

## Dynamique quantique relativiste à une particule

Le premier chapitre traite de l'interaction entre les degrés de liberté du spin électronique et un champ électromagnétique dépendant du temps. Cette étude fondamentale s'inscrit dans la thématique de recherche sur la désaimantation ultra-rapide des systèmes ferromagnétiques par des impulsions laser femto-secondes. On présente en section (1.1) la théorie relativiste de l'électron de Dirac. Le formalisme employé y décrit le comportement du spin de façon très performante mais à condition d'accepter l'existence d'une anti-particule. On montre comment la séparation de la matière et de l'anti-matière permet de retrouver l'équation de Schrödinger et de prédire l'existence de corrections relativistes. Cette opération peut être réalisée à l'aide de la Transformation de Foldy-Wouthuysen (TFW) qui est l'objet de la section (1.2). La TFW permet de développer le hamiltonien transformé en puissance de l'inverse de la masse; on réalise cette procédure de calcul jusqu'au cinquième ordre en  $1/m$ . La section (1.3) est consacrée à une étude complète du hamiltonien transformé au troisième ordre en  $1/m$  dans laquelle apparaît une systématique mathématique gouvernant l'interaction du spin avec le champ électromagnétique. On montre dans la section (1.4) que cette systématique se confirme pour les opérateurs du quatrième et cinquième ordre en  $(1/m)$  ce qui nous amène à postuler une équation générale décrivant l'interaction directe entre le spin et un champ électromagnétique dépendant du temps. Il apparaît de cette étude que ces corrections relativistes impliquant le spin sont d'autant plus importantes que la variation temporelle du champ électromagnétique est rapide. La section (1.5) est consacrée aux équations du mouvement afin d'obtenir des informations sur la dynamique électronique en présence d'une impulsion lumineuse ultra-rapide.

### 1.1 Equation de Dirac

« Dieu n'existe pas, et Dirac est son prophète. »

Wolfgang Pauli

L'équation de Dirac permet une description quantique et relativiste des fermions. **Postulée** en 1928 par le britannique Paul Adrien Maurice Dirac, elle est invariante sous la transformation de Lorentz, admet une interprétation probabiliste de la fonction d'onde, contient naturellement les **degrés de liberté de spin** et parvint à prédire l'existence d'une **anti-particule** (le positron). On tente ici de présenter les bases de la genèse de la théorie relativiste de l'électron. Il existe de nombreux ouvrages traitant du sujet dans tous ses détails [2], [19], [3], [4], [5], [12], [7]... Nous nous limiterons ici aux résultats pertinents dans le cadre de l'étude en matière condensée c'est à dire l'importance du couplage entre le spin électronique et le champ électromagnétique dans la limite non-relativiste.

### 1.1.1 Electron libre

#### Equation de Klein-Gordon

Une des premières tentatives d'obtention d'une équation d'onde relativiste est résumée de la manière suivante. Les principes de correspondance de la mécanique quantique (définition des opérateurs impulsion et énergie) sont utilisés dans l'expression de l'énergie d'une particule relativiste :

$$\begin{aligned} \mathbf{p} &\longmapsto -i\hbar\nabla \\ E &\longmapsto i\hbar\frac{\partial}{\partial t} \\ E^2 &= \mathbf{p}^2c^2 + m^2c^4. \end{aligned}$$

Cette substitution permet de construire une **équation différentielle du second ordre** régissant l'évolution d'une fonction d'onde  $\Psi(\mathbf{r}, t)$ , l'équation dite de Klein-Gordon :

$$\left(\Delta - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2}\right)\Psi(\mathbf{r}, t) = \frac{m^2c^2}{\hbar^2}\Psi(\mathbf{r}, t).$$

On peut montrer que cette équation est invariante sous la transformation de Lorentz et sa résolution en termes d'ondes planes conduit à des solutions d'énergie positive et négative. Cependant elle est inappropriée à l'étude des fermions de spin demi-entier et n'admet pas une interprétation probabiliste satisfaisante de la fonction d'onde. Pour plus de détails, on pourra regarder les références mentionnées précédemment.

#### Equation de Dirac

L'idée de Dirac est de formuler une équation de **type Schrödinger** ne contenant que des opérateurs différentiels du **premier ordre**. Il postule l'existence de deux opérateurs  $\alpha$  et  $\beta$ , le premier lié à l'énergie cinétique de la particule, le second à l'énergie de masse :

$$\begin{aligned} H\Psi(\mathbf{r}, t) &= i\hbar\frac{\partial}{\partial t}\Psi(\mathbf{r}, t) \\ H &= c\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{p} + mc^2\beta. \end{aligned} \tag{1.1}$$

Les opérateurs  $\alpha$  et  $\beta$  sont déterminés en imposant que le carré du hamiltonien soit équivalent à l'expression du carré de l'énergie relativiste :

$$\begin{aligned} H^2 &= (c\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{p} + mc^2\beta)(c\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{p} + mc^2\beta) \\ &= c^2\alpha_i p_i \alpha_k p_k + mc^3(\alpha_i p_i \beta + \beta \alpha_k p_k) + m^2c^4\beta^2 \\ &= \frac{c^2}{2}\{\alpha_i, \alpha_k\}p_i p_k + mc^3\{\alpha_i, \beta\}p_k + m^2c^4\beta^2 \\ &\equiv \mathbf{p}^2c^2 + m^2c^4. \end{aligned}$$

Une identification membre à membre des termes des deux expressions impose que les opérateurs soient **anti-commutants** et de carré égal à un :

$$\begin{aligned} \{\alpha_i, \alpha_k\} &= 2\delta_{ij} \\ \{\alpha_i, \beta\} &= 0 \\ \beta^2 &= 1. \end{aligned}$$

La solution mathématique de ce système donne des matrices complexes de dimensions  $4k \times 4k$  avec  $k$  un entier. Une démonstration rigoureuse est réalisée en annexe B de l'ouvrage [12]. Le cas  $k = 1$

donne les matrices contractées suivantes en bloc  $2 \times 2$  :

$$\alpha = \begin{pmatrix} 0 & \boldsymbol{\sigma} \\ \boldsymbol{\sigma} & 0 \end{pmatrix} \quad \beta = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix},$$

avec  $\boldsymbol{\sigma}$  l'opérateur matriciel  $2 \times 2$  représentant les matrices spinorielles introduites pour la première fois par **Wolfgang Pauli**. On note ici quelques formules et propriétés des matrices de Dirac et de Pauli qui nous seront utiles par la suite :

$$\begin{cases} (\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{A})(\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{B}) = (\mathbf{A} \cdot \mathbf{B}) + i\boldsymbol{\Sigma} \cdot (\mathbf{A} \wedge \mathbf{B}) \\ (\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{A})(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B}) = (\mathbf{A} \cdot \mathbf{B}) + i\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{A} \wedge \mathbf{B}) \\ \{\boldsymbol{\alpha}, \beta\} = 0 \\ \boldsymbol{\Sigma} = \frac{1}{2i}\boldsymbol{\alpha} \wedge \boldsymbol{\alpha} \end{cases}, \quad \boldsymbol{\Sigma} = \begin{pmatrix} \boldsymbol{\sigma} & 0 \\ 0 & \boldsymbol{\sigma} \end{pmatrix}. \quad (1.2)$$

### Particules et Anti-particules

La résolution de l'équation de Dirac (1.1) fait également apparaître deux types de solution, l'une d'énergie positive, l'autre d'énergie négative. Dirac attribua à l'électron de charge élémentaire  $-e$  la première solution et interpréta plus tard la deuxième comme étant associée à une particule de masse identique à l'électron mais de charge  $+e$  qu'il baptisa **positron**. Cette prédiction fut vérifiée en 1932 lorsque **Carl Anderson** découvrit dans des gerbes de rayons cosmiques une particule ayant les mêmes caractéristiques que l'électron mais spiralant dans un sens opposé en présence d'un champ magnétique. On peut lire dans la correspondance de Dirac à Bohr : *It seems reasonable to assume that not all the states of negative energy are occupied, but that there are a few vacancies or "holes". Such a hole, which can be described by a wave function, like an X-ray orbit, would appear experimentally as a thing with  $+E$  energy, since to make the hole disappear (i.e to fill it up) one would have to put  $-E$  energy into it.*

Les matrices du hamiltonien de Dirac étant de type  $4 \times 4$ , la fonction d'onde est un **vecteur d'état à quatre composantes** ou **bispineur**. Les composantes représentent les états de spin up et down de l'électron et du positron :

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = \begin{pmatrix} \Psi_1(\mathbf{r}, t) \\ \Psi_2(\mathbf{r}, t) \\ \Psi_3(\mathbf{r}, t) \\ \Psi_4(\mathbf{r}, t) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \uparrow e^- \\ \downarrow e^- \\ \uparrow e^+ \\ \downarrow e^+ \end{pmatrix}.$$

La structure non diagonale de la matrice  $\boldsymbol{\alpha}$  en bloc  $2 \times 2$  suggère cependant de décrire la fonction d'onde  $\Psi(\mathbf{r}, t)$  comme **deux entités à deux composantes**  $u(\mathbf{r}, t)$  et  $v(\mathbf{r}, t)$  :

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = \begin{pmatrix} u(\mathbf{r}, t) \\ v(\mathbf{r}, t) \end{pmatrix} \quad u(\mathbf{r}, t) = \begin{pmatrix} \uparrow e^- \\ \downarrow e^- \end{pmatrix}, \quad v(\mathbf{r}, t) = \begin{pmatrix} \uparrow e^+ \\ \downarrow e^+ \end{pmatrix}$$

avec  $u(\mathbf{r}, t)$  le **spineur** électronique dit des **grandes composantes** et  $v(\mathbf{r}, t)$  le spineur positronique dit des **petites composantes**.

Montrons comment obtenir les deux solutions bispinorielles  $\Psi_+$  et  $\Psi_-$  et leur liens avec les petites et grandes composantes. La projection de l'équation (1.1) sur le sous-espace vectoriel de dimension deux conduit à un système d'équations différentielles **couplées** pour les fonctions d'onde de l'électron et du positron :

$$\begin{aligned} c(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p})v(\mathbf{r}, t) + mc^2u(\mathbf{r}, t) &= i\hbar \frac{\partial u(\mathbf{r}, t)}{\partial t} \\ c(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p})u(\mathbf{r}, t) - mc^2v(\mathbf{r}, t) &= i\hbar \frac{\partial v(\mathbf{r}, t)}{\partial t}. \end{aligned}$$

A travers cette description les deux particules apparaissent comme indissociables. Dans le cas **stationnaire** d'une **particule libre** la règle de correspondance concernant l'énergie ( $E \rightarrow -i\hbar\partial_t$ ) permet de simplifier le système précédent et de former le déterminant séculaire pour les coordonnées  $u(\mathbf{r})$  et  $v(\mathbf{r})$  notées ici  $u$  et  $v$  par soucis de simplification :

$$\begin{cases} c(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p})v + mc^2u = Eu \\ c(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p})u - mc^2v = Ev \end{cases} \iff \begin{vmatrix} (mc^2 - E) & c(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p}) \\ c(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p}) & -(mc^2 + E) \end{vmatrix} = 0.$$

En utilisant la relation  $(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p})(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p}) = \mathbf{p} \cdot \mathbf{p} = \mathbf{p}^2$  on aboutit aux deux solutions possibles pour l'énergie :

$$E = \pm \sqrt{\mathbf{p}^2 c^2 + m^2 c^4}.$$

Du système d'équations précédent on peut exprimer  $u$  en fonction de  $v$  et  $v$  en fonction de  $u$  selon :

$$\begin{aligned} u &= \frac{c(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p})}{(-mc^2 + E)} v \\ v &= \frac{c(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p})}{(mc^2 + E)} u. \end{aligned} \quad (1.3)$$

Cette astuce permet d'obtenir les bispineurs d'énergies positive et négative en fonction exclusivement des composantes  $u$  et  $v$  :

$$\begin{aligned} \Psi_+ &= \begin{pmatrix} u \\ v \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} u \\ \frac{c(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p})}{(mc^2 + E)} u \end{pmatrix} \quad E > 0 \\ \Psi_- &= \begin{pmatrix} u \\ v \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{c(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p})}{(-mc^2 + E)} v \\ v \end{pmatrix} \quad E < 0. \end{aligned} \quad (1.4)$$

On verra dans la section (1.1.3) comment  $\Psi_+$  ( $\Psi_-$ ) est associé à l'électron (positron) dans la limite non relativiste.

### Equation de conservation

En mécanique quantique non-relativiste, la définition de  $\rho = \Psi^\dagger \Psi$  comme étant la densité de probabilité de présence de la particule permet, en utilisant l'équation de Schrödinger de définir une densité de courant de probabilité de présence  $\mathbf{j}$  satisfaisant une équation de conservation (ou de continuité) :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{j} = 0. \quad (1.5)$$

Il existe un analogue dans la théorie relativiste de l'électron de Dirac qui maintient cette interprétation probabiliste. Dérivant  $\rho$  par rapport au temps et utilisant l'équation de Dirac :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho}{\partial t} &= \Psi^\dagger \frac{\partial \Psi}{\partial t} + \frac{\partial \Psi^\dagger}{\partial t} \Psi \\ &= \frac{1}{i\hbar} \Psi^\dagger H \Psi - \frac{1}{i\hbar} (H \Psi)^\dagger \Psi \\ &= \frac{1}{i\hbar} \Psi^\dagger (-i\hbar c \boldsymbol{\alpha} \cdot \nabla + mc^2 \beta) \Psi - \frac{1}{i\hbar} [(-i\hbar c \boldsymbol{\alpha} \cdot \nabla + mc^2 \beta) \Psi]^\dagger \Psi \\ &= -c \Psi^\dagger \boldsymbol{\alpha} \cdot \nabla \Psi - c \nabla \Psi^\dagger \cdot \boldsymbol{\alpha} \Psi \\ &= -\nabla \cdot (c \Psi^\dagger \boldsymbol{\alpha} \Psi) \\ &= -\nabla \cdot \mathbf{j}. \end{aligned}$$

On retrouve bien l'équation de conservation (1.5) à condition de définir la densité de courant de probabilité selon :

$$\mathbf{j} \equiv c\Psi^\dagger \boldsymbol{\alpha} \Psi. \quad (1.6)$$

### Covariance relativiste

Un autre point important réside dans le fait que le formalisme de l'équation de Dirac est compatible avec la relativité restreinte telle que mathématiquement décrite par la théorie de Lorentz, Poincaré et Einstein. On propose ici de mettre en évidence la forme dite **manifestement covariante** de l'équation de Dirac en introduisant un formalisme **quadri-dimensionnel**. Le point de départ est l'équation de Dirac (1.1) que l'on multiplie à gauche par  $\beta$  et que l'on divise par  $c$  puis on regroupe les dérivées premières par rapport à l'espace et au temps :

$$\left( -i\hbar\beta\boldsymbol{\alpha} \cdot \boldsymbol{\nabla} - i\hbar\frac{\beta}{c}\frac{\partial}{\partial t} + mc \right) \Psi(\mathbf{r}, t) = 0.$$

On utilise ensuite la notation quadri-dimensionnelle  $\partial_\mu = (\boldsymbol{\nabla}, \partial_{ct}) = (\partial_x, \partial_y, \partial_z, \partial_{ct})$  avec les coordonnées spatio-temporelles  $(x, y, z, ct)$  qui deviennent  $(1, 2, 3, 4)$ . On définit également les matrices  $\gamma^\mu$  :

$$\begin{cases} \gamma^k = -i\beta\alpha^k & k = 1, 2, 3 \\ \gamma^4 = -\frac{i\beta}{c} \end{cases}$$

qui permettent d'écrire l'équation de Dirac libre sous sa forme manifestement covariante

$$\left( \gamma^\mu \partial_\mu + \frac{mc}{\hbar} \right) \Psi(\mathbf{r}, t) = 0. \quad (1.7)$$

### Remarques

- La covariance relativiste n'est en réalité assurée que si lors d'un changement de référentiel galiléen  $R$  à un autre référentiel galiléen  $R'$  l'équation (1.7) garde une forme identique du type :  $(\gamma^\mu \partial'_\mu + \frac{mc}{\hbar}) \Psi'(\mathbf{r}', t') = 0$ , où  $\partial'_\mu = \Lambda^\nu_\mu \partial'_\nu$  et  $\Psi'(\mathbf{r}', t') = S(\Lambda)\Psi(\mathbf{r}, t)$  avec  $\Lambda$  et  $S(\Lambda)$  les matrices de Lorentz. Ce point important est discuté en détail dans [12].
- La forme covariante de l'équation (1.7) est un point de départ important en physique théorique qui permet des avancées considérables en électrodynamique quantique et en physique des particules.

### 1.1.2 Electron en interaction avec un champ électromagnétique

On présente l'équation Dirac d'un électron en présence d'un champ électromagnétique extérieur quelconque. Le champ est décrit de manière classique. Il est représenté par les potentiels scalaire  $\Phi(\mathbf{r}, t)$  et vecteur  $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$ . La modification des opérateurs impulsion et énergie est décrite par les substitutions suivantes ( $e < 0$ ) :

$$\begin{aligned} \mathbf{p} &\mapsto \mathbf{p} - e\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) \\ H &\mapsto H + e\Phi(\mathbf{r}, t). \end{aligned}$$

L'équation d'évolution d'un bi-spinneur en présence d'un champ externe s'écrit alors :

$$(c\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)) + mc^2\beta + e\Phi(\mathbf{r}, t))\Psi(\mathbf{r}, t) = i\hbar\frac{\partial\Psi(\mathbf{r}, t)}{\partial t}. \quad (1.8)$$

### Couplage minimal et invariance de jauge

On doit vérifier que l'équation (1.8) est **invariante de jauge** car le choix des potentiels scalaire et vecteur n'est pas limité à un unique couple. Par ailleurs une transformation de jauge introduisant d'autres potentiels  $\mathbf{A}'$  et  $\Phi'$  entraîne une modification de la phase  $\theta$  de la fonction d'onde. Il existe alors une condition qui lie ces trois grandeurs : le **couplage minimal**. Pour le montrer on réalise les transformations de jauge suivantes :

$$\begin{aligned}\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) &\mapsto \mathbf{A}'(\mathbf{r}, t) = \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) + \nabla f(\mathbf{r}, t) \\ \Phi(\mathbf{r}, t) &\mapsto \Phi'(\mathbf{r}, t) = \Phi(\mathbf{r}, t) - \frac{\partial f(\mathbf{r}, t)}{\partial t} \\ \Psi(\mathbf{r}, t) &\mapsto \Psi'(\mathbf{r}, t) = e^{i\theta(\mathbf{r}, t)}\Psi(\mathbf{r}, t).\end{aligned}$$

Ces grandeurs sont substituées dans l'équation (1.8) ce qui donne :

$$\begin{aligned}(\mathbf{c}\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A}') + mc^2\beta + e\Phi')\Psi' &= i\hbar \frac{\partial \Psi'}{\partial t} \\ \left(\mathbf{c}\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} - e(\mathbf{A} + \nabla f)) + mc^2\beta + e\left(\Phi - \frac{\partial f}{\partial t}\right)\right)e^{i\theta}\Psi &= i\hbar \frac{\partial (e^{i\theta}\Psi)}{\partial t}.\end{aligned}$$

On fait agir les opérateurs  $\nabla$  à gauche et  $\partial_t$  à droite :

$$\begin{aligned}\left(\mathbf{c}\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A} - e\nabla f) - ci\hbar\boldsymbol{\alpha} \cdot \nabla i\theta + mc^2\beta + e\Phi - e\frac{\partial f}{\partial t}\right)e^{i\theta}\Psi &= i\hbar e^{i\theta} \left(\frac{\partial \Psi}{\partial t} + i\Psi \frac{\partial \theta}{\partial t}\right) \\ \left(\mathbf{c}\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) + mc^2\beta + e\Phi + [-ec\boldsymbol{\alpha} \cdot \nabla f + c\hbar\boldsymbol{\alpha} \cdot \nabla \theta] + \left[-e\frac{\partial f}{\partial t} + \hbar\frac{\partial \theta}{\partial t}\right]\right)\Psi &= i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t}.\end{aligned}$$

On retrouve bien l'équation (1.8) à condition de poser  $c\hbar\boldsymbol{\alpha} \cdot \nabla \theta = ec\boldsymbol{\alpha} \cdot \nabla f$  et  $\frac{\partial f}{\partial t} = \hbar\frac{\partial \theta}{\partial t}$  conduisant à  $f = \frac{\hbar}{e}\theta$ . L'équation de Dirac en présence d'un champ externe est donc invariante sous l'action des transformations de jauge :

$$\begin{aligned}\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) &\mapsto \mathbf{A}'(\mathbf{r}, t) = \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) + \nabla \frac{\hbar}{e}\theta(\mathbf{r}, t) \\ \Phi(\mathbf{r}, t) &\mapsto \Phi'(\mathbf{r}, t) = \Phi(\mathbf{r}, t) - \frac{\hbar}{e} \frac{\partial \theta(\mathbf{r}, t)}{\partial t} \\ \Psi(\mathbf{r}, t) &\mapsto \Psi'(\mathbf{r}, t) = e^{i\theta(\mathbf{r}, t)}\Psi(\mathbf{r}, t).\end{aligned}$$

### Covariance relativiste

On présente le cas en interaction sous sa forme manifestement covariante. L'équation (1.8) est multipliée à gauche par  $\beta$  et divisée par  $\hbar c$  :

$$\begin{aligned}\frac{\beta}{\hbar c} \left(\mathbf{c}\boldsymbol{\alpha} \cdot (-i\hbar\nabla - e\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)) - i\hbar \frac{\partial}{\partial t} + mc^2\beta + e\Phi(\mathbf{r}, t)\right)\Psi(\mathbf{r}, t) &= 0 \\ \left(-i\beta\boldsymbol{\alpha} \cdot \nabla - i\frac{\beta}{c} \frac{\partial}{\partial t} - \frac{e}{\hbar c}(\beta c\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) - \beta\Phi(\mathbf{r}, t)) + \frac{mc}{\hbar}\right)\Psi(\mathbf{r}, t) &= 0\end{aligned},$$

ce qui permet d'introduire la notation quadri-dimensionnelle utilisée dans la section précédente  $\partial_\mu = (\partial_k, \partial_{ct})$  et  $\gamma^\mu = (\gamma^k, \gamma^4) = (-i\beta\alpha^k, -\frac{i}{c}\beta)$  en y ajoutant celle des potentiels électromagnétiques  $A_\mu = (A_k, -\frac{\Phi}{c})$  pour obtenir l'équation sous sa forme covariante :

$$\left(\gamma^\mu \left(\partial_\mu - \frac{ie}{\hbar} A_\mu\right) + \frac{mc}{\hbar}\right)\Psi(\mathbf{r}, t) = 0. \quad (1.9)$$

**Remarque esthétique :** on peut aussi présenter une forme alternative de l'équation (1.9) en la portant au second ordre [4]. On donne ci-dessous quelques propriétés utiles :

$$\begin{aligned}\gamma^\mu \gamma^\nu &= g^{\mu\nu} - i\sigma^{\mu\nu} \\ \sigma^{\mu\nu} &= -\sigma^{\nu\mu} = \frac{1}{2i} [\gamma^\mu, \gamma^\nu] = \frac{1}{2} (\sigma^{\mu\nu} - \sigma^{\nu\mu}), \quad g^{\mu\nu} = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -1 \end{bmatrix}\end{aligned}\quad (1.10)$$

Pour obtenir une équation différentielle du second ordre, on applique l'opérateur  $(\gamma^\mu (\partial_\mu - \frac{ie}{\hbar} A_\mu) - \frac{mc}{\hbar})$  à l'équation (1.9) ce qui donne compte tenu des propriétés (1.10) :

$$\begin{aligned}& \left( \gamma^\mu \gamma^\nu \left( \partial_\mu - \frac{ie}{\hbar} A_\mu \right) \left( \partial_\nu - \frac{ie}{\hbar} A_\nu \right) - \frac{m^2 c^2}{\hbar^2} \right) \Psi = 0 \\ & \left( (g^{\mu\nu} - i\sigma^{\mu\nu}) \left( \partial_\mu - \frac{ie}{\hbar} A_\mu \right) \left( \partial_\nu - \frac{ie}{\hbar} A_\nu \right) - \frac{m^2 c^2}{\hbar^2} \right) \Psi = 0 \\ & \left( \left( \partial_\mu - \frac{ie}{\hbar} A_\mu \right)^2 - \frac{i}{2} (\sigma^{\mu\nu} - \sigma^{\nu\mu}) \left( \partial_\mu - \frac{ie}{\hbar} A_\mu \right) \left( \partial_\nu - \frac{ie}{\hbar} A_\nu \right) - \frac{m^2 c^2}{\hbar^2} \right) \Psi = 0 \\ & \left( \left( \partial_\mu - \frac{ie}{\hbar} A_\mu \right)^2 - \frac{i}{2} \sigma^{\mu\nu} \left[ \left( \partial_\mu - \frac{ie}{\hbar} A_\mu \right), \left( \partial_\nu - \frac{ie}{\hbar} A_\nu \right) \right] - \frac{m^2 c^2}{\hbar^2} \right) \Psi = 0.\end{aligned}\quad (1.11)$$

En utilisant les relations de commutation  $[A_\mu, A_\nu] = [\partial_\mu, \partial_\nu] = 0$ , le commutateur de l'équation (1.11) se réduit au tenseur électromagnétique  $F_{\mu\nu} = \partial_\mu A_\nu - \partial_\nu A_\mu$  et l'on obtient :

$$\left( \left( \partial_\mu - \frac{ie}{\hbar} A_\mu \right)^2 + \frac{e}{2} \sigma^{\mu\nu} F_{\mu\nu} - \frac{m^2 c^2}{\hbar^2} \right) \Psi = 0.\quad (1.12)$$

Le terme d'interaction rayonnement-matière  $\sigma^{\mu\nu} F_{\mu\nu}$  peut aussi s'écrire dans une représentation complexe impliquant les matrices de Dirac et les champs électromagnétiques :

$$\sigma^{\mu\nu} F_{\mu\nu} = (i\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{E} + \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B}).$$

Cette forme complexe  $(i\mathbf{E}, \mathbf{B})$  peut se retrouver lorsqu'on écrit les équations de Maxwell dans un formalisme de Dirac (voir Annexe *Equations de Maxwell dans le formalisme de Dirac*).

### Equations dynamiques

On présente ici les équations d'évolution des opérateurs position et impulsion au cours du temps. Pour une fonction d'onde  $\Psi$  dont l'évolution est régie par le hamiltonien  $H = c\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) + mc^2\beta + e\Phi$ , la dérivée totale par rapport au temps de la valeur moyenne  $X \equiv \langle \Psi | \hat{X} | \Psi \rangle$  d'une observable quelconque  $\hat{X}$  est donnée par l'équation d'Ehrenfest :

$$\frac{dX}{dt} = \frac{i}{\hbar} [H, X] + \frac{\partial X}{\partial t}.\quad (1.13)$$

Ainsi pour l'observable position  $\mathbf{r}$ , tenant compte du fait que  $[\beta, \mathbf{r}] = [\mathbf{A}, \mathbf{r}] = [\Phi, \mathbf{r}] = 0$ , l'application de la relation d'Ehrenfest donne :

$$\frac{d\mathbf{r}}{dt} = \frac{i}{\hbar} [H, \mathbf{r}] + \frac{\partial \mathbf{r}}{\partial t} = \frac{i}{\hbar} [c\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{p}, \mathbf{r}].$$

On utilise ensuite la relation  $[AB, C] = [A, C]B + A[B, C]$  pour calculer le commutateur

$$\begin{aligned} [\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{p}, \mathbf{r}] &= \sum_{ij} [\alpha_i p_i, x_j] \mathbf{e}_j = \sum_{ij} ([\alpha_i, x_j] p_i \mathbf{e}_j + \alpha_i [p_i, x_j] \mathbf{e}_j) \\ &= -i\hbar \sum_{ij} \alpha_i \mathbf{e}_j \delta_{ij} = -i\hbar \sum_i \alpha_i \mathbf{e}_i = -i\hbar \boldsymbol{\alpha}. \end{aligned}$$

La dérivée au cours de temps de la valeur moyenne de la position permet d'obtenir une correspondance pour la vitesse moyenne en formalisme de Dirac :

$$\frac{d\mathbf{r}}{dt} = \frac{i}{\hbar} [c\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{p}, \mathbf{r}] = c\boldsymbol{\alpha} \equiv \langle \mathbf{v} \rangle \quad (1.14)$$

Remarque :

Comme les valeurs propres de  $\boldsymbol{\alpha}$  sont  $\pm 1$ , les valeurs propres de l'opérateur vitesse sont  $\pm c$ .

Pour l'observable impulsion la relation (1.13) conduit à :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}(\mathbf{p} - e\mathbf{A}) &= \frac{i}{\hbar} [H, (\mathbf{p} - e\mathbf{A})] + \frac{\partial}{\partial t}(\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \\ &= \frac{i}{\hbar} [H, \mathbf{p}] - \frac{ei}{\hbar} [H, \mathbf{A}] - e \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} \\ &= -\frac{eic}{\hbar} [\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{A}, \mathbf{p}] + \frac{ei}{\hbar} [\Phi, \mathbf{p}] - \frac{eic}{\hbar} [\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{p}, \mathbf{A}] - e \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} \\ &= -\frac{eic}{\hbar} \sum_{ij} i\hbar \alpha_i ([A_i, \nabla_j] \mathbf{e}_j + [\nabla_i, A_j] \mathbf{e}_j) + \frac{ei}{\hbar} (-i\hbar) [\Phi, \nabla] - e \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t}, \quad (1.15) \end{aligned}$$

où on a utilisé les relations suivantes :

$$\begin{cases} [\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{A}, \mathbf{A}] = [\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{p}, \mathbf{p}] = [\beta, \mathbf{p}] = 0 \\ [\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{p}, \mathbf{A}] = \sum_{ij} [\alpha_i p_i, A_j \mathbf{e}_j] = -i\hbar \sum_{ij} \alpha_i [\nabla_i, A_j] \mathbf{e}_j \\ [\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{A}, \mathbf{p}] = \sum_{ij} [\alpha_i A_i, p_j \mathbf{e}_j] = -i\hbar \sum_{ij} \alpha_i [A_i, \nabla_j] \mathbf{e}_j \end{cases} .$$

Les commutateurs peuvent être transformés par application sur une fonction d'onde  $\phi$ , par exemple pour le premier :

$$\begin{aligned} [A_i, \nabla_j] \phi &= (A_i \nabla_j - \nabla_j A_i) \phi = A_i (\nabla_j \phi) - \nabla_j (A_i \phi) \\ &= A_i (\nabla_j \phi) - (\nabla_j A_i) \phi - A_i (\nabla_j \phi) = -(\nabla_j A_i) \phi. \end{aligned}$$

De la même manière on montre que  $[\nabla_i, A_j] \phi = \nabla_i A_j \phi$  et que  $[\Phi, \nabla] \phi = -(\nabla \Phi) \phi$  ce qui permet d'écrire (1.15) selon :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}(\mathbf{p} - e\mathbf{A}) &= e \left( -\nabla \Phi - \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} \right) + ec \sum_{ij} \alpha_i (\nabla_j A_i - \nabla_i A_j) \mathbf{e}_j \\ &= e(\mathbf{E} + \boldsymbol{\alpha} c \wedge \mathbf{B}). \end{aligned}$$

On reconnaît la force de Lorentz et l'équation traduit le principe fondamental de la dynamique si on applique la correspondance (1.14)  $\langle \mathbf{v} \rangle = c\boldsymbol{\alpha}$  :

$$\frac{d}{dt}(\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \equiv e(\mathbf{E} + \langle \mathbf{v} \rangle \wedge \mathbf{B}). \quad (1.16)$$

### 1.1.3 Limite non-relativiste

#### Définition et critère

La limite non-relativiste consiste à **transformer les informations physiques sous la condition**  $v \ll c$ . En multipliant les deux quantités par  $mc$  on peut former l'expression de la quantité de mouvement classique de la particule et obtenir un rapport de comparaison énergétique. L'énergie associée à la quantité de mouvement est alors faible devant l'énergie de masse. **On parlera de limite non relativiste pour des vitesses faibles devant la vitesse de la lumière ou pour le régime des faibles ou basses énergies, sous entendues faibles devant l'énergie de masse :**

$$\frac{v}{c} \approx \frac{pc}{mc^2} \ll 1. \quad (1.17)$$

Il s'agit de voir comment est transformée la théorie de l'électron de Dirac dans la limite non relativiste.

#### Transformation du bispineur

Partons des expressions des bispineurs  $\Psi_+$  et  $\Psi_-$  données en (1.4) :

$$\begin{aligned} \Psi_+ &= \begin{pmatrix} u \\ \frac{c(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p})}{(mc^2 + E)} u \end{pmatrix} \\ \Psi_- &= \begin{pmatrix} \frac{c(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p})}{(-mc^2 + E)} v \\ v \end{pmatrix}. \end{aligned}$$

A la limite non relativiste, l'énergie cinétique est faible devant l'énergie de masse, la quantité de mouvement est remplacée par son expression classique  $\mathbf{p} = m\mathbf{v}$ , les rapports entre les composantes deviennent :

$$E = \sqrt{\mathbf{p}^2 c^2 + m^2 c^4} \approx mc^2 \quad \Leftrightarrow \quad \begin{cases} v = \frac{c(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p})}{(mc^2 + E)} u \approx \frac{c(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p})}{2mc^2} u \\ u = \frac{c(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p})}{(-mc^2 + E)} v \approx -\frac{c(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p})}{2mc^2} v \\ \mathbf{p} \mapsto m\mathbf{v} \end{cases} \quad \Leftrightarrow \quad \begin{cases} v \approx \frac{\boldsymbol{\sigma}}{2} \cdot \frac{\mathbf{v}}{c} u \ll u \\ u \approx -\frac{\boldsymbol{\sigma}}{2} \cdot \frac{\mathbf{v}}{c} v \ll v \end{cases}$$

Ainsi pour le bispineur d'énergie positive  $\Psi_+$  (négative  $\Psi_-$ ) la composante du positron (électron) est négligeable devant celle de l'électron (positron)

$$\begin{aligned} \Psi_+ &= \begin{pmatrix} u \\ \frac{c(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p})}{(mc^2 + E)} u \end{pmatrix} \longrightarrow \begin{pmatrix} u \\ \epsilon \end{pmatrix} \\ & \qquad \qquad \qquad v \ll c \\ \Psi_- &= \begin{pmatrix} \frac{c(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p})}{(-mc^2 + E)} v \\ v \end{pmatrix} \longrightarrow \begin{pmatrix} \epsilon \\ v \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (1.18)$$

On voit bien que  $\Psi_+$  se transforme en composante purement électronique  $u$  et  $\Psi_-$  en composante purement positronique  $v$  lors du passage à la limite non relativiste. Dans le monde de la matière, le positron n'existe pas à basse énergie. Cependant on voit dans (1.18) **qu'il existe en quantité infinitésimale  $\epsilon$  mais non nulle**. Ce couplage résiduel entre la particule et son anti-particule est susceptible de modifier la dynamique électronique dans des régions de l'espace de l'ordre de grandeur de la longueur d'onde Compton  $\lambda_c = \frac{h}{mc}$  (voir Annexe *Zitterbewegung*). Néanmoins, le *Zitterbewegung* (mouvement de tremblement) n'est pas observable. Toute tentative de déterminer la position

de l'électron à mieux qu'une longueur d'onde Compton ne peut se faire que par la création de paires électron-positron. De façon plus formelle, on peut dire que l'opérateur position (cela s'applique aussi à l'opérateur de spin) dans la théorie de Dirac n'est pas une observable à une particule (opérateur à un corps) dans le sens que si  $\Psi$  représente la fonction d'onde de l'électron dans un état ayant une énergie propre strictement positive ou négative, l'état  $X\Psi$  n'aura pas la même propriété. Ainsi, la trajectoire de l'électron ne pourra jamais être tracée sur un trajet bien défini. Elle sera au mieux confinée dans un tube ayant pour diamètre la longueur d'onde de Compton.

### Transformation du hamiltonien

Un autre point important est la transformation du hamiltonien relativiste. A basse énergie, seul l'électron existe et l'évolution de la fonction d'onde est régie par l'équation de Schrödinger. Or, pour pouvoir étudier l'électron seul, il faut réaliser une transformation mathématique (transformation canonique) du hamiltonien qui découple l'évolution de la particule et de son anti-particule. Le passage de l'équation de Dirac à sa version non relativiste doit alors respecter deux conditions :

1. Séparer les composantes de l'électron et du positron. C'est une opération de **diagonalisation** de la matrice hamiltonienne.

$$\begin{pmatrix} h_{11} & h_{12} \\ h_{21} & h_{22} \end{pmatrix} \longrightarrow \begin{pmatrix} H^{(-e)} & 0 \\ 0 & H^{(+e)} \end{pmatrix}$$

2. Retrouver une équation de type Schrödinger régissant l'évolution de l'électron du type :

$$H^{(-e)}u = i\hbar \frac{\partial u}{\partial t}$$

mais qui satisfasse aux réalités des conditions physiques du problème c'est-à-dire obtenir les opérateurs corrects correspondant aux situations que l'on peut rencontrer en mécanique quantique :

- (a) cas d'une particule libre
- (b) cas d'une particule en interaction avec un champ
  - (b1) magnétique statique
  - (b2) électrique statique
  - (b3) électromagnétique dépendant du temps

### Exemple : équation de Schrödinger-Pauli

Prenons le cas pertinent (b1) d'un électron en présence d'un champ magnétique statique en l'absence de champ électrique ( $\mathbf{A}(r,t) = \mathbf{A}(r) = \mathbf{A}$  et  $\Phi(r,t) = 0$ ). L'équation d'évolution (1.8) d'un bispineur devient :

$$(c\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) + mc^2\beta)\Psi = i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t}.$$

En écrivant  $\Psi$  sous la forme  $\Psi' = \Psi e^{-\frac{imc^2t}{\hbar}}$  on peut transformer la matrice hamiltonienne selon :

$$\begin{pmatrix} 0 & c\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \\ c\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) & -2mc^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} u \\ v \end{pmatrix} = i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} u \\ v \end{pmatrix},$$

et obtenir une équation d'évolution temporelle pour  $u$  qui ne contient plus l'énergie de masse :

$$c\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A})v = i\hbar \frac{\partial u}{\partial t}. \quad (1.19)$$

Pour éliminer la composante indésirable  $v$  on utilise la proportionnalité entre les grandes et petites composantes utilisée lors de la transformation du bispinuer mais en substituant  $(\mathbf{p} - e\mathbf{A})$  à  $\mathbf{p}$  ce qui donne  $v \approx \frac{c\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A})}{2mc^2} u$ . On réinjecte alors cette expression dans (1.19) :

$$\frac{1}{2m} (\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A})\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A})) u = i\hbar \frac{\partial u}{\partial t}.$$

Il faut alors utiliser les propriétés des matrices de Pauli définies en (1.2) :

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A})\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) &= (\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2 + i\boldsymbol{\sigma} \cdot ((\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A})) \\ &= (\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2 - ie\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{p} \wedge \mathbf{A} + \mathbf{A} \wedge \mathbf{p}) \\ &= (\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2 - e\hbar\boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A} + \mathbf{A} \wedge \nabla), \end{aligned}$$

on transforme ensuite les opérateurs :

$$\begin{aligned} (\nabla \wedge \mathbf{A} + \mathbf{A} \wedge \nabla)\phi &= \nabla \wedge \mathbf{A}\phi + \nabla\phi \wedge \mathbf{A} + \mathbf{A} \wedge \nabla\phi \\ &= \nabla \wedge \mathbf{A}\phi + \nabla\phi \wedge \mathbf{A} - \nabla\phi \wedge \mathbf{A} \\ &= \nabla \wedge \mathbf{A}\phi \end{aligned}$$

et l'on voit apparaître le champ magnétique  $\mathbf{B} = \nabla \wedge \mathbf{A}$ . On retrouve l'équation de Schrödinger-Pauli :

$$H^{(-e)}u = \left( \frac{1}{2m} (\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2 - \frac{e\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B} \right) u = i\hbar \frac{\partial u}{\partial t} \quad (1.20)$$

avec l'opérateur d'énergie cinétique et celui du couplage Zeeman qui avait été ajouté à la main par Pauli. En l'absence de champ magnétique (cas (a)) avec  $(\mathbf{A} = \mathbf{B} = 0)$  on retrouve naturellement dans (1.20) l'équation de Schrödinger sous sa forme originelle. La puissance du formalisme de Dirac se situe dans le fait qu'il contient intrinsèquement l'information concernant le spin.

### Développement en puissance de $1/m$

L'équation (1.20) est une équation du premier ordre en  $(1/m)$ . En présence d'un potentiel électrique statique  $\Phi$  (cas (2b)) le développement non-relativiste de l'équation de Dirac permet d'ajouter le potentiel électrique mais également de retrouver l'interaction spin-orbite si on réalise le développement au second ordre en  $(1/m)$  :

$$H^{(-e)} = e\Phi + \underbrace{\frac{1}{m} H^{(1)}}_{\text{Schrödinger-Pauli}} + \underbrace{\frac{1}{m^2} H^{(2)}}_{\text{spin-orbite}} + \mathcal{O}(m^{-3}),$$

avec pour  $\frac{H^{(2)}}{m^2}$  l'expression suivante :

$$\frac{H^{(2)}}{m^2} = -\frac{e\hbar^2}{8m^2c^2} \nabla \cdot \mathbf{E} - \frac{e\hbar}{4m^2c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A})) - \frac{ie\hbar^2}{8m^2c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \wedge \mathbf{E}). \quad (1.21)$$

Les termes de (1.21) qui seront explicités dans la section (1.3.1) sont des corrections relativistes. Ils contiennent tous le terme  $c^2$  au dénominateur, leur contribution devient négligeable en physique classique lorsque  $c \rightarrow \infty$ . Il est ainsi possible de transformer le hamiltonien de Dirac en un hamiltonien développable en puissance de l'inverse de la masse  $1/m$  ou en puissance de  $1/c$ . Ces paramètres sont à

relier à la quantité  $mc^2$  qui permet d'évaluer l'importance des opérateurs obtenus aux ordres supérieurs en les comparant directement à l'énergie de masse. On évalue alors l'amplitude des corrections selon le critère de la limite non relativiste (1.17).

Il existe plusieurs types de transformations ou méthodes, à des ordres de développement variés, qui permettent d'obtenir des renseignements supplémentaires sur les opérateurs qui agissent sur l'électron dans le monde des basses énergies. Notons :

- Des méthodes dites de réinjection ou de substitution qui utilisent la proportionnalité entre les composantes  $u$  de l'électron et  $v$  du positron (exemple du cas (b1) au premier ordre). On peut trouver dans l'ouvrage *Electrodynamique quantique* [19] de L. Landau et E. Lifschitz un résultat à l'ordre deux (en puissance de  $1/c$ ) qui retrouve des termes similaires à (1.21).
- La transformation de Douglass-Kroll-Hess utilisée par les chimistes quantiques dans le cadre de la chimie quantique relativiste ou chimie des éléments lourds [16],[17].
- Une méthode de développement en puissance de  $\hbar$  [18].
- La Transformation de Foldy-Wouthuysen [9].

Le contexte d'étude de ce travail de thèse est la recherche d'information concernant l'interaction entre les degrés de liberté de spin et un champ électromagnétique dépendant du temps (cas(b3)). Il existe dans l'ouvrage *Electrodynamique et Optique Quantiques* [12] de F. Reuse une Transformation de Foldy-Wouthuysen réalisée au troisième ordre en  $1/m$  qui met en évidence l'existence d'un couplage entre le spin et la dérivée temporelle du champ électrique :

$$H = \frac{1}{m}H^{(1)} + \frac{1}{m^2}H^{(2)} + \frac{1}{m^3}H^{(3)}(\boldsymbol{\sigma}, \partial_t \mathbf{E}) + \vartheta(m^{-4}).$$

Cette notion de dépendance temporelle de la source externe ne peut être négligée dans une problématique de spectroscopie ultra-rapide.

## 1.2 Transformation de Foldy-Wouthuysen (TFW)

« 6 oeufs, 200g de farine, 150g de sucre  
1 tablette de chocolat, 1 verre d'huile  
1 verre de café, 1 sachet de levure »

Recette de Vibersviller

On présente ici les grandes lignes de la TFW sans entrer dans les détails. Il s'agit d'une opération mathématique qui permet de diagonaliser le hamiltonien de Dirac et de séparer les composantes de l'électron et du positron. Après avoir introduit la transformation on précise les notions de parité qui sont nécessaires pour comprendre le processus de diagonalisation. On réalise ensuite un état des lieux de la TFW telle que présentée dans les ouvrages de référence [3], [4], [5], puis on explique l'intérêt d'utiliser celle explicitée dans [12]. On réalise enfin la procédure de calcul jusqu'au cinquième ordre en  $1/m$  pour obtenir ce que nous appellerons le hamiltonien transformé de Foldy-Wouthuysen.

### 1.2.1 Intérêts et présentation

En 1950 Leslie. L. Foldy et Siegfried. A. Wouthuysen proposent une nouvelle *représentation* du formalisme de Dirac qui sépare les états d'énergie positive et négative [9]. L'intérêt principal était

d'utiliser cette transformation pour obtenir une représentation alternative des opérateurs position, impulsion et de spin [30]. Ce point ne sera pas détaillé et on se contentera de la transformation relative au hamiltonien. On peut développer le hamiltonien en puissance de  $1/m$  ou en puissance de  $1/c$  mais le paramètre d'expansion est en réalité un rapport entre l'échelle de variation spatiale (ou temporelle) des potentiels d'interaction avec l'échelle de longueur d'onde (ou de période) Compton. Ce point est précisé dans [9] : *The expansion parameter may equally well be regarded as  $1/c$  [...]. The actual dimensionless expansion parameters are the operators  $(\hbar/mc)\nabla$  and  $(\hbar/mc^2)(\partial/\partial t)$ .*

### Transformation canonique

Soit un bispinuer  $\Psi(\mathbf{r}, t)$  de Dirac dont l'évolution est donnée par l'équation (1.22) où  $H$  est le hamiltonien de Dirac :

$$i\hbar\frac{\partial}{\partial t}\Psi(\mathbf{r}, t) = H\Psi(\mathbf{r}, t). \quad (1.22)$$

Considérons une transformation de la fonction d'onde :

$$\Psi'(\mathbf{r}, t) = e^{iS(t)}\Psi(\mathbf{r}, t) \quad (1.23)$$

avec  $\exp(iS(t))$  un opérateur **unitaire** et  $S(t)$  un opérateur **auto-adjoint** dépendant du temps. On cherche à obtenir une équation d'évolution pour  $\Psi'(\mathbf{r}, t)$ . On dérive alors  $\Psi'(\mathbf{r}, t)$  par rapport au temps comme le produit de fonctions donné par (1.23) et on utilise (1.22) :

$$\begin{aligned} i\hbar\frac{\partial}{\partial t}\Psi'(\mathbf{r}, t) &= i\hbar\partial_t\left(e^{iS(t)}\right)\Psi(\mathbf{r}, t) + i\hbar e^{iS(t)}\partial_t(\Psi(\mathbf{r}, t)) \\ &= i\hbar\partial_t\left(e^{iS(t)}\right)\Psi(\mathbf{r}, t) + e^{iS(t)}H\Psi(\mathbf{r}, t). \end{aligned} \quad (1.24)$$

Pour continuer on utilise les deux relations suivantes : la première est issue de la transformation inverse et la seconde de règles de dérivation élémentaires :

$$\begin{cases} \Psi(\mathbf{r}, t) = e^{-iS(t)}\Psi'(\mathbf{r}, t) \\ \partial_t(e^{iS(t)}e^{-iS(t)}) = 0 \Leftrightarrow \partial_t(e^{iS(t)})e^{-iS(t)} = -e^{iS(t)}\partial_t(e^{-iS(t)}). \end{cases}$$

Partant de (1.24) on développe jusqu'à obtenir la forme du hamiltonien transformé  $H'$  :

$$\begin{aligned} i\hbar\frac{\partial}{\partial t}\Psi'(\mathbf{r}, t) &= i\hbar\partial_t\left(e^{iS(t)}\right)e^{-iS(t)}\Psi'(\mathbf{r}, t) + e^{iS(t)}He^{-iS(t)}\Psi'(\mathbf{r}, t) \\ &= -i\hbar e^{iS(t)}\partial_t\left(e^{-iS(t)}\right)\Psi'(\mathbf{r}, t) + e^{iS(t)}He^{-iS(t)}\Psi'(\mathbf{r}, t) \\ &= \left(e^{iS(t)}He^{-iS(t)} - i\hbar e^{iS(t)}\partial_t\left(e^{-iS(t)}\right)\right)\Psi'(\mathbf{r}, t) \\ &= H'\Psi'(\mathbf{r}, t). \end{aligned}$$

Le hamiltonien transformé s'écrit aussi sous une forme plus condensée :

$$H' = e^{iS(t)}\left(H - i\hbar\frac{\partial}{\partial t}\right)e^{-iS(t)}. \quad (1.25)$$

### Diagonalisation - Notion de parité

Dans le hamiltonien de Dirac :

$$H = c\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) + mc^2\beta + e\Phi,$$

c'est l'opérateur énergie cinétique  $c\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A})$  qui est responsable du couplage entre les composantes  $u$  et  $v$  car c'est le seul opérateur qui s'exprime en fonction de la matrice  $\boldsymbol{\alpha}$  non diagonale. Un opérateur de ce type est dit **impair**. Les autres termes  $mc^2\beta$  et  $e\Phi$  sont diagonaux et découplent les grandes et petites composantes. Un tel opérateur est un opérateur dit **pair**. Le hamiltonien de Dirac peut se décomposer en une partie paire  $H_p$  et une partie impaire  $H_i$  :

$$H = H_i + H_p \quad \begin{cases} H_i = c\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \\ H_p = mc^2\beta + e\Phi \end{cases} .$$

De manière générale, tout opérateur linéaire se décompose en la somme d'un opérateur impair  $A_i$  et d'un opérateur pair  $A_p$  de telle sorte que l'opérateur impair anticommute avec  $\beta$  et l'opérateur pair  $A_p$  commute avec  $\beta$  :

$$A = A_i + A_p \quad \begin{cases} A_i = \frac{1}{2}(A - \beta A \beta) & \{\beta, A_i\} = 0 \\ A_p = \frac{1}{2}(A + \beta A \beta) & [\beta, A_p] = 0 \end{cases} .$$

On voit bien, compte tenu des propriétés des matrices de Dirac, que les hamiltoniens pair et impair respectent les définitions introduites :

$$\begin{cases} \{\boldsymbol{\alpha}, \beta\} = 0 \\ \beta^2 = 1 \end{cases} \Leftrightarrow \begin{cases} \{\beta, H_i\} = \{\beta, c\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A})\} = 0 \\ [\beta, H_p] = [\beta, mc^2\beta + e\Phi] = 0 \end{cases} .$$

Le but est d'utiliser la transformation (1.25) et de déterminer l'opérateur  $S(t)$  de telle sorte que  $H'$  soit exclusivement pair c'est à dire satisfasse à la condition  $[\beta, H'] = 0$ . Par ailleurs nous allons supposer que  $S$  est impair :  $\{\beta, S\}$ . On résume la procédure de transformation selon :

$$\begin{array}{ccc} H = H_i + H_p & \xrightarrow{TFW} & H' = H'_p \\ \{\beta, S\} = 0 & & [\beta, H'] = 0 \end{array} .$$

Règles de parité :

Soit  $I$  un opérateur impair tel que  $\{\beta, I\} = 0$  et  $P$  un opérateur pair tel que  $[\beta, P] = 0$ . **Les règles de parité concernant les produits d'opérateurs sont les mêmes que pour les nombres entiers :**

– le produit de deux opérateurs impairs est un opérateur pair :

$$[\beta, I^2] = \beta I^2 - I^2 \beta = \beta I^2 + I \beta I = \beta I^2 - \beta I^2 = 0$$

– le produit d'un opérateur impair et d'un opérateur pair est un opérateur impair :

$$\{\beta, IP\} = \beta IP + IP \beta = \beta IP + I \beta P = \beta IP - \beta IP = 0$$

– le produit de deux opérateurs pairs est un opérateur pair :

$$[\beta, P^2] = \beta P^2 - P^2 \beta = \beta P^2 - P \beta P = \beta P^2 - \beta P^2 = 0$$

### Développement itératif usuel de la TFW

On rencontre dans plusieurs ouvrages un **développement itératif** de la transformation de Foldy-Wouthuysen qui permet d'éliminer les opérateurs impairs **ordre après ordre** en choisissant judicieusement l'opérateur  $S$  à chaque étape du processus itératif. On propose ici d'en faire un bref résumé. **On adopte les notations utilisées dans les ouvrages courants** [3], [4], [5] . Dans le hamiltonien

de Dirac, l'opérateur impair d'énergie cinétique est noté  $O = c\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A})$  ( $O$  pour odd) et l'opérateur d'énergie potentielle pair est noté  $E = e\Phi$  ( $E$  pour even). Il est proposé pour l'opérateur  $S$  l'expression (1.26) suivante :

$$\begin{aligned} H &= mc^2\beta + O + E \\ S &= \frac{\beta O}{2imc^2}. \end{aligned} \quad (1.26)$$

Cette expression est justifié plus bas. Ainsi  $H$  est impair à l'ordre zéro en  $(1/m)$  et avec (1.26)  $S$  est un opérateur impair à l'ordre un en  $(1/m)$ . Généralement la transformation de FW se limite au premier terme de l'équation (1.25) (l'aspect temporel est négligé), soit :

$$H' = e^{iS} H e^{-iS}. \quad (1.27)$$

Cette expression est transformée en utilisant le lemme d'Hadamard :

– si  $A$  et  $B$  sont des opérateurs linéaires on peut réaliser le développement :

$$e^A B e^{-A} = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{n!} \Omega_n(A, B) = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{n!} [A, [A, [\dots[A, B]] \dots]]$$

– avec comme propriétés pour l'opérateur  $\Omega_n(A, B)$  :

$$\begin{cases} \Omega_{n+1}(A, B) = [A, \Omega_n(A, B)] \\ \Omega_0(A, B) = B \end{cases} \quad \begin{cases} \Omega_n(A, kB) = k\Omega_n(A, B) \\ \Omega_n(kA, B) = k^n \Omega_n(A, B) \\ \Omega_n(A, B + C) = \Omega_n(A, B) + \Omega_n(A, C) \end{cases}$$

et (1.27) devient :

$$H' = e^{iS} H e^{-iS} = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^n}{n!} \Omega_n(S, H). \quad (1.28)$$

Par exemple, si l'on souhaite obtenir tous les termes au deuxième ordre en  $(1/m)$ , il faut développer la formule (1.28) jusqu'à  $n = 3$ . Cependant le terme  $\Omega_3(S, H)$  se réduit à  $\Omega_3(S, mc^2\beta)$  car les deux autres termes  $\Omega_3(S, O)$  et  $\Omega_3(S, E)$  sont des termes du troisième ordre au vu de la définition (1.26). Ainsi

$$\begin{aligned} H' &= H + i\Omega_1(S, H) + \frac{i^2}{2!} \Omega_2(S, H) + \frac{i^3}{3!} \Omega_3(S, mc^2\beta) + \vartheta(m^{-3}) \\ &= H + i[S, H] + \frac{i^2}{2} [S, [S, H]] + \frac{i^3}{6} [S, [S, [S, mc^2\beta]]] + \vartheta(m^{-3}). \end{aligned} \quad (1.29)$$

Utilisant l'expression proposée pour  $S = \frac{\beta O}{2imc^2}$  et en tenant compte du fait que  $\{\beta, O\} = 0$  le calcul des commutateurs donne :

$$\begin{aligned} i[S, H] &= -O + \frac{\beta O^2}{mc^2} + \frac{1}{2mc^2} [\beta O, E], \\ \frac{i^2}{2} [S, [S, H]] &= -\frac{\beta O^2}{2mc^2} - \frac{O^3}{2m^2c^4} - \frac{1}{8m^2c^4} [O, [O, E]], \\ \frac{i^3}{6} [S, [S, [S, mc^2\beta]]] &= \frac{O^3}{6m^2c^4}. \end{aligned}$$

On réinjecte ces expressions dans l'équation (1.29) ce qui donne :

$$\begin{aligned}
H' &= H + i[S, H] + \frac{i^2}{2}[S, [S, H]] + \frac{i^3}{6}[S, [S, [S, mc^2\beta]]] + \vartheta(m^{-3}) \\
&= (mc^2\beta + O + E) + \left(-O + \frac{\beta O^2}{mc^2} + \frac{1}{2mc^2}[\beta O, E]\right) \\
&\quad + \left(-\frac{\beta O^2}{2mc^2} - \frac{O^3}{2m^2c^4} - \frac{1}{8m^2c^4}[O, [O, E]]\right) + \frac{O^3}{6m^2c^4} + \vartheta(m^{-3}). \tag{1.30}
\end{aligned}$$

Avec les règles de parité du paragraphe précédent on peut regrouper les termes de (1.30) entre éléments pairs et impairs et définir un nouvel opérateur pair  $E'$  contenant des termes de l'ordre zéro à l'ordre deux en  $(1/m)$  et un nouvel opérateur impair  $O'$  contenant des termes du premier et deuxième ordre en  $1/m$  :

$$\begin{aligned}
H' &= mc^2\beta + \underbrace{\left(E + \frac{\beta O^2}{2mc^2} - \frac{1}{8m^2c^4}[O, [O, E]]\right)}_{E'} + \underbrace{\left(\frac{1}{2mc^2}[\beta O, E] - \frac{O^3}{3m^2c^4}\right)}_{O' \approx \frac{1}{m} + \frac{1}{m^2}} + \vartheta(m^{-3}) \\
&= mc^2\beta + E' + O' + \vartheta(m^{-3}).
\end{aligned}$$

Plus précisément on comprend à présent que c'est le choix judicieux de l'opérateur  $S = \frac{\beta O}{2imc^2}$  défini en (1.26) qui permet de supprimer le terme impair  $O$  provenant de  $H$  par le biais du commutateur  $i[S, mc^2\beta] = -O$ . **Ainsi lors d'une transformation l'imparité du hamiltonien  $H'$  est repoussée à l'ordre supérieur.** Si on réalise une seconde transformation en choisissant un nouvel opérateur  $S'$  capable d'éliminer l'opérateur  $O'$  on pourra obtenir un hamiltonien  $H''$  dont l'imparité représentée par  $O''$  apparaît au second ordre en  $(1/m)$  :

$$\begin{aligned}
S' &= \frac{\beta O'}{2imc^2} \\
H'' &= e^{iS'} H' e^{-iS'} \approx mc^2\beta + E'' + \underbrace{O''}_{\approx \frac{1}{m^2}} + \vartheta(m^{-3}).
\end{aligned}$$

Pour avoir finalement un hamiltonien avec des termes **exclusivement pairs au deuxième ordre**, on réalise alors une troisième et dernière transformation :

$$\begin{aligned}
S''' &= \frac{\beta O''}{2imc^2} \\
H''' &= e^{iS''} H'' e^{-iS''} \approx mc^2\beta + E''' + \underbrace{O'''}_{\approx \frac{1}{m^3}} + \vartheta(m^{-3})
\end{aligned}$$

### Dans la littérature

La transformation est généralement développée au **troisième ordre** dans les ouvrages **mais pas exclusivement**, c'est à dire que la transformation conduit à un hamiltonien du troisième ordre contenant une partie paire et impaire, la partie impaire est ensuite simplement négligée. Dans [3] et [5] on peut trouver :

$$\begin{aligned}
H' &= mc^2\beta + e\Phi + \frac{E^{(1)}}{m} + \frac{E^{(2)}}{m^2} + \frac{E^{(3)}}{m^3} + \underbrace{\frac{O^{(3)}}{m^3}}_{\text{négligée}} + \vartheta(m^{-4}) \\
&\approx mc^2\beta + e\Phi + \frac{\beta O}{2mc^2} - \frac{1}{8m^2c^4}[O, [O, e\Phi]] - \frac{\beta O^3}{8m^3c^6} + \vartheta(m^{-4}). \tag{1.31}
\end{aligned}$$

Le calcul des fonctions  $\frac{E^{(n)}}{m^n}$  conduit à :

$$\begin{aligned}\frac{E^{(1)}}{m} &= \frac{\beta(\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2}{2m} - \frac{\beta e\hbar}{2m} \boldsymbol{\Sigma} \cdot \mathbf{B} \\ \frac{E^{(2)}}{m^2} &= -\frac{e\hbar^2}{8m^2c^2} \boldsymbol{\nabla} \cdot \mathbf{E} - \frac{e\hbar}{4m^2c^2} \boldsymbol{\Sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A})) - \frac{ie\hbar^2}{8m^2c^2} \boldsymbol{\Sigma} \cdot (\boldsymbol{\nabla} \wedge \mathbf{E}) \\ \frac{E^{(3)}}{m^3} &= -\frac{\beta(\mathbf{p} - e\mathbf{A})^4}{8m^3c^4}.\end{aligned}$$

Par ailleurs il est important de rappeler que nous avons négligé la partie temporelle dans l'équation (1.25) et que la transformation totale est donnée par :

$$H' = e^{iS(t)} \left( H - i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \right) e^{-iS(t)}.$$

Dans l'ouvrage [4] est réalisée une transformation prenant en compte l'aspect temporel mais celle-ci conduit aux mêmes résultats que l'équation (1.31). De la même manière la partie impaire du troisième ordre est négligée au lieu d'être repoussée au quatrième ordre. En revanche, dans [12] on peut trouver un hamiltonien exclusivement pair au troisième ordre qui contient le terme  $E^{(3)}$  mais également des opérateurs qui présentent un couplage entre le spin  $\sigma$  et la dérivée temporelle du champ électrique  $\partial_t \mathbf{E}$ . On résume l'inventaire des méthodes de la manière suivante :

$$\left. \begin{array}{l} e^{iS} H e^{-iS} \quad [5], [3] \\ e^{iS} (H - \partial_t) e^{-iS} \quad [4] \end{array} \right\} \longrightarrow H' = mc^2\beta + e\Phi + \frac{E^{(1)}}{m} + \frac{E^{(2)}}{m^2} + \frac{E^{(3)}}{m^3} + \underbrace{\frac{O^{(3)}}{m^3}}_{\text{négligée}} + \vartheta(m^{-4})$$

$$e^{iS} (H - \partial_t) e^{-iS} \quad [12] \longrightarrow H' = mc^2\beta + e\Phi + \frac{E^{(1)}}{m} + \frac{E^{(2)}}{m^2} + \frac{1}{m^3} \left( E^{(3)} + \underbrace{E'^{(3)}(\sigma, \partial_t \mathbf{E})}_{!!!} \right) + \vartheta(m^{-4}).$$

L'aspect temporellement variable des termes obtenus dans [12] (détaillés en section (1.3.1)) nous amène naturellement à privilégier cette procédure devant les autres. Il faut cependant préciser que nous ne sommes pas en mesure d'affirmer qu'un développement exclusivement pair au troisième ordre réalisé selon les méthodes employés dans [5],[3] et [4] ne conduit pas aux éléments  $E'^{(3)}(\sigma, \partial_t \mathbf{E})$ . Ce travail n'a pas été réalisé. Nous avons cependant privilégié la dernière procédure car elle présente un caractère plus général que les autres, comme nous allons le voir dans la section suivante.

### 1.2.2 Procédure récursive de la TFW

La procédure présentée dans [12] possède aussi un caractère itératif mais elle décompose au préalable l'hamiltonien  $H$  en sa partie paire et impaire et permet d'obtenir une forme précise de l'opérateur  $S$  pour chaque ordre en  $1/m$  du développement. On adopte les notations utilisées dans [12]. Le hamiltonien de Dirac s'écrit :

$$H = T + V + mc^2\beta \quad \left\{ \begin{array}{l} T = c\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \\ V = e\Phi \end{array} \right. .$$

#### Développement en série entière

On part de l'expression totale de la transformation canonique :

$$H' = e^{iS} \left( H - i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \right) e^{-iS}.$$

Le premier terme est transformé comme précédemment en utilisant le lemme d'Hadammard :

$$e^{iS} H e^{-iS} = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{n!} \Omega_n(S, H). \quad (1.32)$$

La partie temporelle est transformée en développant les exponentielles sous la forme d'une série entière  $e^{(\pm iS)} = 1 \pm iS - \frac{S^2}{2} + \dots$ . L'action de l'opérateur  $\partial_t$  sur le membre de droite permet d'introduire l'opérateur  $\partial_t S$ . On écrira par exemple  $\partial_t S^2 = S \cdot \partial_t S + \partial_t S \cdot S$ . Cette astuce permet d'obtenir :

$$-i\hbar e^{iS} \frac{\partial}{\partial t} e^{-iS} = i\hbar \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^{n+1}}{(n+1)!} \Omega_n(S, \partial_t S). \quad (1.33)$$

La contribution des éléments (1.32) et (1.33) conduisent à l'équation (1.35). A l'aide de la définition :

$$\dot{S} \equiv \frac{i}{\hbar} [V, S] + \partial_t S, \quad (1.34)$$

on transforme (1.35) en (1.36). Cette opération délicate est expliquée en détail dans l'annexe *Transformation de FW*.

$$H' = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^n}{n!} \Omega_n(S, H) + i\hbar \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^{n+1}}{(n+1)!} \Omega_n(S, \partial_t S) \quad (1.35)$$

$$= V + mc^2 \beta \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^n}{n!} (-2iS)^n + \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^n}{n!} \Omega_n \left( S, T - \frac{\hbar}{n+1} \dot{S} \right). \quad (1.36)$$

### Séparation des hamiltoniens pair et impair

On peut à l'aide des règles de parité extraire les expressions complètes des parties paire et impaire et décomposer le hamiltonien transformé selon :

$$H' = H'_p + H'_i.$$

L'opérateur  $S$  est défini comme impair. D'après la définition (1.34) utilisée l'opérateur dérivé  $\dot{S}$  est impair également (comme produit d'un opérateur pair  $V$  avec un opérateur impair  $S$ ). La parité des éléments de l'équation (1.36) dépend uniquement de la valeur de l'entier  $n$  c'est-à-dire :

L'opérateur  $S^n$  est un opérateur :

- pair si  $n$  est pair
- impair si  $n$  est impair.

L'opérateur  $\Omega_n(S, T - \frac{\hbar \dot{S}}{n+1})$  est un opérateur :

- impair si  $n$  est pair
- pair si  $n$  est impair.

On peut ainsi obtenir les expressions exactes de  $H'_p$  et de  $H'_i$  selon la valeur de l'entier  $n$  :

$$H'_p = V + mc^2 \beta \sum_{n=0,2,4} \frac{(-2iS)^n}{n!} + \sum_{n=1,3,5} \frac{i^n}{n!} \Omega_n \left( S, T - \frac{\hbar \dot{S}}{n+1} \right), \quad (1.37)$$

$$H'_i = mc^2 \beta \sum_{n=1,3,5} \frac{(-2iS)^n}{n!} + \sum_{n=0,2,4} \frac{i^n}{n!} \Omega_n \left( S, T - \frac{\hbar \dot{S}}{n+1} \right). \quad (1.38)$$

### Développement en puissance de l'inverse de la masse - procédure de diagonalisation

On suppose ensuite que l'opérateur  $S$  et donc sa dérivée  $\dot{S}$  sont des opérateurs développables en puissance de l'inverse de la masse :

$$\begin{aligned} S &= S_1 m^{-1} + S_2 m^{-2} + S_3 m^{-3} + \dots = \sum_{k=0}^{\infty} S_k m^{-k}, \\ \dot{S} &= \dot{S}_1 m^{-1} + \dot{S}_2 m^{-2} + \dot{S}_3 m^{-3} + \dots = \sum_{k=0}^{\infty} \dot{S}_k m^{-k}. \end{aligned}$$

Par conséquent, les hamiltoniens pair (1.37) et impairs (1.38) le sont également et peuvent s'écrire sous la forme :

$$\begin{aligned} H'_p &= V + mc^2 \beta + \sum_{k=1}^{\infty} H'_p{}^{(k)} m^{-k} \\ &= V + mc^2 \beta + H'_p{}^{(1)}(S_1, T) m^{-1} + H'_p{}^{(2)}(S_1, S_2, T) m^{-2} + \dots \\ H'_i &= \sum_{k=0}^{\infty} H'_i{}^{(k)} m^{-k} \\ &= H'_i{}^{(0)}(S_1, T) m^{-0} + H'_i{}^{(1)}(S_1, S_2, T) m^{-1} + H'_i{}^{(2)}(S_1, S_2, S_3, T) m^{-2} + \dots \end{aligned}$$

A ce stade de la procédure il s'agit de déterminer les opérateurs  $S_k$  qui permettent de diagonaliser le hamiltonien de Dirac c'est-à-dire obtenir un hamiltonien  $H'$  exclusivement pair. On impose donc que le hamiltonien impair  $H'_i$  soit nul et ceci à chaque ordre du développement :

$$H'_i{}^{(k)} = 0 \quad \forall k.$$

Par exemple, en imposant  $H'_i{}^{(0)}(S_1, T) = 0$  on peut déterminer la forme de l'opérateur  $S_1(T)$  et obtenir une expression pour la partie paire  $H'_p{}^{(1)}(S_1, T)$ . De manière générale  $H'_i{}^{(k-1)} = 0$  impose la forme de l'opérateur  $S_k$  qui détermine alors  $H'_p{}^{(k)}$ . L'hamiltonien pair  $H'_p{}^{(k)}$  est appelé hamiltonien transformé de Foldy-Wouthuysen à l'ordre  $k$  en  $(1/m)$ .

### 1.2.3 Exemple au troisième ordre en $(1/m)$

On explique dans cette section la procédure qui permet d'obtenir le hamiltonien transformé de FW au troisième ordre en  $1/m$ . Il faut au préalable déterminer le hamiltonien impair à l'ordre deux en  $1/m$ .

#### Détermination du hamiltonien impair

Pour obtenir le hamiltonien impair à l'ordre deux, l'équation (1.38) est développée jusqu'à  $n = 3$  en tenant compte du fait que :

$$\begin{cases} S^n = O(m^{-n}) \\ \Omega_n(S, T) = O(m^{-n}) \\ \Omega_n(S, \dot{S}) = O(m^{-n-1}) \end{cases} .$$

On obtient :

$$\begin{aligned}
H'_i &= mc^2\beta \left( -2iS + \frac{4}{3}iS^3 \right) + \Omega_0(S, T - \hbar\dot{S}) - \frac{1}{2}\Omega_2(S, T) + \vartheta(m^{-3}) \\
&= m^{-0}(-2ic^2\beta S_1 + T) + m^{-1}(-2ic^2\beta S_2 - \hbar\dot{S}_1) \\
&\quad + m^{-2} \left( -2ic^2\beta S_3 + \frac{4ic^2}{3}\beta S_1^3 - \hbar\dot{S}_2 - \frac{1}{2}\Omega_2(S_1, T) \right) + \vartheta(m^{-3}) \tag{1.39}
\end{aligned}$$

$$\equiv H'_i{}^{(0)}(S_1, T)m^{-0} + H'_i{}^{(1)}(S_1, S_2, T)m^{-1} + H'_i{}^{(2)}(S_1, S_2, S_3, T)m^{-2} + \vartheta(m^{-3}). \tag{1.40}$$

où le détail des calculs est présenté dans l'annexe *Transformation de FW*. On identifie ensuite les termes de chaque ordre de (1.39) à ceux du développement (1.40) et on impose  $H'_i{}^{(k)} = 0$  :

$$H'_i{}^{(0)}(S_1, T) = -2ic^2\beta S_1 + T = 0 \tag{1.41}$$

$$H'_i{}^{(1)}(S_1, S_2, T) = -2ic^2\beta S_2 - \hbar\dot{S}_1 = 0 \tag{1.42}$$

$$H'_i{}^{(2)}(S_1, S_2, S_3, T) = -2ic^2\beta S_3 + \frac{4ic^2}{3}\beta S_1^3 - \hbar\dot{S}_2 - \frac{1}{2}\Omega_2(S_1, T) = 0. \tag{1.43}$$

L'équation (6.41) donne directement en multipliant par  $\beta$  à gauche et avec  $\beta^2 = 1$  :

$$S_1 = \frac{\beta T}{2ic^2}. \tag{1.44}$$

On reconnaît alors la forme de l'opérateur  $S = \frac{\beta O}{2mc^2}$  proposé dans la section précédente où naturellement  $O$  joue le rôle de  $T$ . L'équation (1.42) permet de déterminer facilement :

$$S_2 = -\frac{\beta\hbar\dot{S}_1}{2ic^2} = -\frac{\hbar\dot{T}}{(2ic^2)^2}. \tag{1.45}$$

Enfin on détermine  $S_3$  en réinjectant (1.44) et (1.45) dans (1.43) :

$$\begin{aligned}
S_3 &= \frac{\beta}{2ic^2} \left( \frac{4ic^2}{3}\beta \left( \frac{\beta T}{2ic^2} \right)^3 + \hbar^2 \frac{\hbar\ddot{T}}{(2ic^2)^2} - \frac{1}{2} \left[ \frac{\beta T}{2ic^2}, \left[ \frac{\beta T}{2ic^2}, T \right] \right] \right) \\
&= \frac{\beta}{(2ic^2)^3} \left( \frac{4}{3}T^3 + \hbar^2\ddot{T} \right). \tag{1.46}
\end{aligned}$$

### Détermination du hamiltonien pair

On cherche à obtenir le hamiltonien pair au troisième ordre en  $(1/m)$ . On développe alors l'équation (1.37) jusqu'à  $n = 4$  ce qui donne :

$$\begin{aligned}
H'_p &= V + mc^2\beta \left( 1 + \frac{(-2iS)^2}{2!} + \frac{(-2iS)^4}{4!} \right) + i\Omega_1(S, T - \frac{\hbar}{2}\dot{S}) - i\frac{1}{3!}\Omega_3(S, T) + \vartheta(m^{-4}) \\
&= V + mc^2\beta + m^{-1}(-2c^2\beta S_1^2 + i\Omega_1(S_1, T)) + m^{-2} \left( -2c^2\beta\{S_1, S_2\} - \frac{i\hbar}{2}\Omega_1(S_1, \dot{S}_1) \right. \\
&\quad \left. + i\Omega_1(S_2, T) \right) + m^{-3} \left( -2c^2\beta(S_2^2 + \{S_1, S_3\} - \frac{1}{3}S_1^4) - \frac{i\hbar}{2}\Omega_1(S_1, \dot{S}_2) - \frac{i\hbar}{2}\Omega_1(S_2, \dot{S}_1) \right. \\
&\quad \left. + i\Omega_1(S_3, T) - \frac{i}{6}\Omega_3(S_1, T) \right) + \vartheta(m^{-4}) \tag{1.47}
\end{aligned}$$

$$\equiv V + mc^2\beta + H'_p{}^{(1)}(S_1, T)m^{-1} + H'_p{}^{(2)}(S_1, S_2, T)m^{-2} + H'_p{}^{(3)}(S_1, S_2, S_3, T)m^{-3} + \vartheta(m^{-4}). \tag{1.48}$$

En identifiant à chaque ordre les termes de (1.47) avec le développement (1.48) on obtient en simplifiant la notation  $H_p^{(k)}(S_1, \dots, S_k, T) \longrightarrow H^{(k)}$  :

$$H^{(0)} = V + mc^2\beta \quad (1.49)$$

$$H^{(1)} = -2c^2\beta S_1^2 + i\Omega_1(S_1, T) \quad (1.50)$$

$$H^{(2)} = -2c^2\beta\{S_1, S_2\} - \frac{i\hbar}{2}\Omega_1(S_1, \dot{S}_1) + i\Omega_1(S_2, T) \quad (1.51)$$

$$H^{(3)} = -2c^2\beta(S_2^2 + \{S_1, S_3\} - \frac{1}{3}S_1^4) - \frac{i\hbar}{2}\Omega_1(S_1, \dot{S}_2) - \frac{i\hbar}{2}\Omega_1(S_2, \dot{S}_1) + i\Omega_1(S_3, T) - \frac{i}{6}\Omega_3(S_1, T). \quad (1.52)$$

On utilise les expressions de  $S_1$ ,  $S_2$  et  $S_3$  pour déterminer la forme du hamiltonien pair à chaque ordre. En remplaçant (1.44) dans (1.50) on obtient :

$$H^{(1)} = -2c^2\beta \left( \frac{\beta T}{2ic^2} \right)^2 + i \left[ \frac{\beta T}{2ic^2}, T \right] = \frac{\beta T^2}{2c^2}. \quad (1.53)$$

Puis (1.44) et (1.45) dans (1.51) :

$$\begin{aligned} H^{(2)} &= -2c^2\beta \left\{ \frac{\beta T}{2ic^2}, \frac{-\hbar\dot{T}}{(2ic^2)^2} \right\} - \frac{i\hbar}{2} \left[ \frac{\beta T}{2ic^2}, \frac{\beta\dot{T}}{2ic^2} \right] + i \left[ -\frac{\hbar\dot{T}}{(2ic^2)^2}, T \right] \\ &= -\frac{i\hbar}{8c^4} [T, \dot{T}]. \end{aligned} \quad (1.54)$$

Enfin (1.52) est calculée grâce à (1.44), (1.45) et (1.46) :

$$\begin{aligned} H^{(3)} &= -2c^2\beta \left( \left( \frac{-\hbar\dot{T}}{(2ic^2)^2} \right)^2 + \left\{ \frac{\beta T}{2ic^2}, \frac{\beta}{(2ic^2)^3} \left( \frac{4}{3}T^3 + \hbar^2\ddot{T} \right) \right\} - \frac{1}{3} \left( \frac{\beta T}{2ic^2} \right)^4 \right) - \frac{i\hbar}{2} \left[ \frac{\beta T}{2ic^2}, \frac{-\hbar\ddot{T}}{(2ic^2)^2} \right] \\ &\quad - \frac{i\hbar}{2} \left[ \frac{-\hbar\dot{T}}{(2ic^2)^2}, \frac{\beta\dot{T}}{2ic^2} \right] + i \left[ \frac{\beta}{(2ic^2)^3} \left( \frac{4}{3}T^3 + \hbar^2\ddot{T} \right), T \right] - \frac{i}{6} \left[ \frac{\beta T}{2ic^2}, \left[ \frac{\beta T}{2ic^2}, \left[ \frac{\beta T}{2ic^2}, T \right] \right] \right] \\ &= -\frac{\beta T^4}{8c^6} - \frac{\hbar^2\beta}{16c^6} \{T, \ddot{T}\}. \end{aligned} \quad (1.55)$$

On obtient alors en sommant (1.49), (1.53), (1.54) et (1.55) l'expression **complète du hamiltonien transformé de Foldy-wouthuysen au troisième ordre** :

$$H' = V + mc^2\beta + \frac{\beta T^2}{2mc^2} - \frac{i\hbar}{8m^2c^4} [T, \dot{T}] - \frac{\beta T^4}{8m^3c^6} - \frac{\hbar^2\beta}{16m^3c^6} \{T, \ddot{T}\} + \vartheta(m^{-4}). \quad (1.56)$$

En comparant aux opérateurs de l'équation (1.31), qui négligeait simplement l'imparité du troisième ordre, on voit que la présente procédure permet de prendre en compte un terme supplémentaire au troisième ordre qui contient l'opérateur  $\{T, \ddot{T}\}$  ! On remarquera que le terme  $[O, [O, e\Phi]]$  du second ordre de l'équation (1.31) est complètement équivalent à  $[T, \dot{T}]$  vu la définition (1.34) de  $\dot{S}$  utilisée.

#### 1.2.4 Extension au cinquième ordre en $(1/m)$

La même procédure est appliquée mais en choisissant de déterminer le hamiltonien pair transformé au **cinquième ordre** en  $(1/m)$ . Il nécessite donc de déterminer auparavant le hamiltonien impair à l'ordre quatre pour obtenir  $H_i^{(3)}$  et  $H_i^{(4)}$  afin d'en déduire les fonctions  $S_4$  et  $S_5$  nécessaires aux

calculs de  $H_p'^{(4)}$  et  $H_p'^{(5)}$ .

### hamiltonien impair

Pour avoir tous les termes de  $m^0$  à  $m^{-4}$  il faut développer la formule (1.38) jusqu'à  $n = 5$  ce qui nous amène à l'expression suivante :

$$\begin{aligned} H_i' &= mc^2\beta \left( -2iS + \frac{4}{3}iS^3 + \frac{4}{15}iS^5 \right) + \Omega_0(S, T - \hbar\dot{S}) + \frac{1}{2}\Omega_2(S, T - \frac{\hbar\dot{S}}{3}) + \frac{1}{4!}\Omega_4(S, T - \frac{\hbar\dot{S}}{5}) + \vartheta(m^{-5}) \\ &= H_i'^{(0)}m^0 + H_i'^{(1)}m^{-1} + H_i'^{(2)}m^{-2} + H_i'^{(3)}(S_1, \dots, S_4, T)m^{-3} + H_i'^{(4)}(S_1, \dots, S_5, T)m^{-4} + \vartheta(m^{-5}). \end{aligned}$$

On retrouve bien évidemment les mêmes expressions pour  $H_i'^{(0)}$ ,  $H_i'^{(1)}$  et  $H_i'^{(2)}$  et on obtient pour les expressions du troisième et quatrième ordre :

$$\begin{aligned} H_i'^{(3)} &= -2ic^2\beta S_4 + \frac{4ic^2}{3}\beta(S_1^2S_2 + S_1S_2S_1 + S_2S_1^2) - \hbar\dot{S}_3 \\ &\quad + S_1TS_2 + S_2TS_1 - \frac{1}{2}\{S_1S_2 + S_2S_1, T\} + \frac{\hbar}{6}\Omega_2(S_1, \dot{S}_1) \end{aligned} \quad (1.57)$$

$$\begin{aligned} H_i'^{(4)} &= -2ic^2\beta S_5 + \frac{4ic^2}{3}\beta(S_1^2S_3 + S_1S_2^2 + S_2S_1S_2 + S_2^2S_1 + S_1S_3S_1 + S_3S_1^2) \\ &\quad - \frac{4ic^2}{45}\beta S_1^5 - \frac{1}{2}\{S_1S_3 + S_3S_1 + S_2S_2, T\} + S_1TS_3 + S_3TS_1 + S_2TS_2 \\ &\quad - \frac{\hbar}{6}\{S_1^2, \dot{S}_2\} + \{S_1S_2 + S_2S_1, \dot{S}_1\} + \frac{\hbar}{3}(2S_1\dot{S}_2S_1 + S_1\dot{S}_1S_2 + S_2\dot{S}_1S_1). \end{aligned} \quad (1.58)$$

Ensuite, en imposant les condition  $H_i'^{(3)} = 0$  et  $H_i'^{(4)} = 0$ , les équations (1.57) et (1.58) conduisent aux expressions du quatrième et cinquième ordre de l'opérateur  $S$  :

$$S_4 = -\frac{\hbar}{(2ic^2)^4} \left( \frac{7}{3}\{T^2, \dot{T}\} + \frac{2}{3}T\dot{T}T + \hbar^2\ddot{T} \right) \quad (1.59)$$

$$S_5 = \frac{\beta}{(2ic^2)^5} \left( \frac{16}{5}T^5 + \frac{10}{3}\{T^2, \ddot{T}\} + \frac{4\hbar^2}{3}T\ddot{T}T + \frac{13\hbar^2}{6}\{T, \dot{T}^2\} + \frac{16\hbar^2}{3}\dot{T}T\dot{T} + \hbar^4\ddot{T} \right). \quad (1.60)$$

### hamiltonien pair

L'expression (1.37) est développée jusqu'à  $n = 6$  :

$$\begin{aligned} H_p' &= V + mc^2\beta \left( 1 + \frac{(-2iS)^2}{2!} + \frac{(-2iS)^4}{4!} + \frac{(-2iS)^6}{6!} \right) \\ &\quad + i\Omega_1(S, T - \frac{\hbar}{2}\dot{S}) - i\frac{1}{3!}\Omega_3(S, T - \frac{\hbar\dot{S}}{4}) + i\frac{1}{5!}\Omega_5(S, T) + \vartheta(m^{-6}) \\ &= V + mc^2\beta + \frac{\beta T^2}{2mc^2} - \frac{i\hbar}{8m^2c^4}[T, \dot{T}] - \frac{\beta T^4}{8m^3c^6} - \frac{\hbar^2\beta}{16m^3c^6}\{T, \ddot{T}\} \\ &\quad + H_p'^{(4)}(S_1, \dots, S_4, T)m^{-4} + H_p'^{(5)}(S_1, \dots, S_5, T)m^{-4} + \vartheta(m^{-6}) \end{aligned}$$

Après de longues et douloureuses pages A3 de calculs (17 pour être précis) on obtient les expressions des opérateurs du quatrième et cinquième ordre :

$$\begin{aligned}
H'^{(4)} &= -2c^2\beta(\{S_1, S_4\} + \{S_2, S_3\}) + \frac{2}{3}c^2\beta(\{S_1^3, S_2\} + S_1^2S_2S_1 + S_1S_2S_1^2) \\
&+ i[S_4, T] - \frac{i\hbar}{2} \left( [S_1, \dot{S}_3] + [S_2, \dot{S}_2] + [S_3, \dot{S}_1] \right) - \frac{i}{6} \left( (S_1^2S_2 + S_1S_2S_1 + S_2S_1^2)T \right. \\
&- 3(S_1^2TS_2 + S_1S_2TS_1 + S_2S_1TS_1) + 3(S_1TS_2S_1 + S_2TS_1^2 + S_1TS_1S_2) \\
&- T(S_1^2S_2 + S_1S_2S_1 + S_2S_1^2) \left. \right) + \frac{i\hbar}{24} (S_1^3\dot{S}_1 - 3S_1^2\dot{S}_1S_1 + 3S_1\dot{S}_1S_1^2 - \dot{S}_1S_1^3) \\
&, \tag{1.61}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
H'^{(5)} &= -2c^2\beta(\{S_1, S_5\} + \{S_2, S_4\} + S_3S_3) + \frac{2}{3}c^2\beta(S_1^3S_3 + S_1^2S_3S_1 + S_1^2S_2^2 + S_1S_2S_1S_2 \\
&+ S_1S_2^2S_1 + S_1S_3S_1^2 + S_2S_1^2S_2 + S_2^2S_1^2 + S_3S_1^3 + S_2S_1S_2S_1) - \frac{4}{45}c^2\beta S_1^6 + i[S_5, T] \\
&- \frac{i\hbar}{2} ([S_1, \dot{S}_4] + [S_2, \dot{S}_3] + [S_3, \dot{S}_2] + [S_4, \dot{S}_1]) - \frac{i}{6} \left( ([S_1^2S_3, T] - 3S_1^2TS_3 + 3S_1TS_1S_3) \right. \\
&+ ([S_1S_3S_1, T] - 3S_1S_3TS_1 + 3S_1TS_3S_1) + ([S_1S_2^2, T] - 3S_1S_2TS_2 + 3S_1TS_2^2) \\
&+ ([S_2S_1S_2, T] - 3S_2S_1TS_1 + 3S_2TS_1S_2) + ([S_2^2S_1, T] - 3S_2^2TS_1 + 3S_2TS_2S_1) \\
&+ ([S_3S_1^2, T] - 3S_3S_1TS_1 + 3S_3TS_1^2) \left. \right) + \frac{i\hbar}{24} \left( ([S_1^3, \dot{S}_2] - 3S_1^2\dot{S}_2S_1 + 3S_1\dot{S}_2S_1^2) \right. \\
&+ ([S_1^2S_2, \dot{S}_1] - 3S_1^2\dot{S}_1S_2 + 3S_1\dot{S}_1S_1S_2) + ([S_2S_1^2, \dot{S}_1] - 3S_2S_1\dot{S}_1S_1 + 3S_2\dot{S}_1S_1^2) \\
&\left. \left( [S_1S_2S_1, \dot{S}_1] - 3S_1S_2\dot{S}_1S_1 + 3S_1\dot{S}_1S_2S_1 \right) \right) + \frac{i}{120}\Omega_5(S_1, T) \\
&. \tag{1.62}
\end{aligned}$$

En reinjectant l'expression (1.59) de  $S_4$  dans (1.61) et celle (5.60) de  $S_5$  dans (1.62) on obtient finalement :

$$H'^{(4)} = \frac{i\hbar}{16c^8} \left( -\frac{7}{8}[\dot{T}, T^3] - \frac{5}{8}T[T, \dot{T}]T - \frac{\hbar^2}{2}[\ddot{T}, T] \right) \tag{1.63}$$

$$\begin{aligned}
H'^{(5)} &= \frac{\beta}{32c^{10}} \left( 2T^6 + \frac{49\hbar^2}{24}\{T^3, \ddot{T}\} + \frac{17\hbar^2}{8}T\{T, \ddot{T}\}T + \frac{3}{2}\{T^2, \dot{T}^2\} \right. \\
&\left. + \frac{5}{2}(T\dot{T}T\dot{T} + \dot{T}T\dot{T}T) + \frac{1}{4}\dot{T}T^2\dot{T} + \frac{85}{12}T\dot{T}^2T + \frac{\hbar^4}{2}\{T, \ddot{T}\} \right). \tag{1.64}
\end{aligned}$$

### 1.3 Forme explicite du hamiltonien

« La hiérarchie c'est comme une étagère,  
plus c'est haut et plus c'est inutile... »

On étudie en détail le hamiltonien transformé de FW au troisième ordre en  $1/m$ . A l'aide du formalisme de Dirac on le transforme sous sa forme dite explicite, en faisant apparaître les opérateurs de quantité de mouvement, de spin et du champ électromagnétique. On montre comment le passage à la limite non-relativiste permet de retrouver la forme bien connue de l'équation de Schrödinger et on discute de l'origine physique de chaque opérateur. On s'intéresse ensuite plus particulièrement aux termes d'interaction entre les degrés de liberté de spin et le champ électromagnétique et on montre qu'ils semblent obéir à une systématique mathématique.

#### 1.3.1 Equation de Schrödinger-Pauli ordre par ordre

On rappelle l'expression du hamiltonien transformé de FW au troisième ordre en  $(1/m)$  que l'on sépare en trois parties  $H^{(k)}$  ( $k = 1, 2, 3$ ) :

$$H' = \underbrace{V + mc^2\beta + \frac{\beta T^2}{2mc^2}}_{H^{(1)}} - \underbrace{\frac{i\hbar}{8m^2c^4}[T, \dot{T}]}_{H^{(2)}} - \underbrace{\frac{\beta T^4}{8m^3c^6} - \frac{\hbar^2\beta}{16m^3c^6}\{T, \ddot{T}\}}_{H^{(3)}}.$$

##### Premier ordre : l'équation de Schrödinger-Pauli

En ne conservant que les termes du premier ordre en  $(1/m)$  le hamiltonien du système se réduit au terme  $H^{(1)}$  qui contient l'opérateur  $T^2$ . On transforme le produit  $T \cdot T$  à l'aide de la formule de Dirac  $(\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{A})(\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{B}) = \mathbf{A} \cdot \mathbf{B} + i\boldsymbol{\Sigma} \cdot (\mathbf{A} \wedge \mathbf{B})$  donnée par (1.2) :

$$\begin{aligned} T^2 &= c\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A})c\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \\ &= c^2(\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2 - iec^2\boldsymbol{\Sigma} \cdot (\mathbf{p} \wedge \mathbf{A} + \mathbf{A} \wedge \mathbf{p}) \\ &= c^2(\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2 - e\hbar c^2\boldsymbol{\Sigma} \cdot \mathbf{B} \end{aligned} \quad (1.65)$$

où l'on rappelle que l'on utilise l'action des opérateurs sur une fonction d'onde  $\phi$  pour transformer  $(\mathbf{A} \wedge \mathbf{p} + \mathbf{p} \wedge \mathbf{A})\phi = (\mathbf{p} \wedge \mathbf{A})\phi = -i\hbar\nabla \wedge \mathbf{A}\phi$  et la définition du champ d'induction magnétique  $\mathbf{B} = \nabla \wedge \mathbf{A}$ . L'équation d'évolution pour un bispinuer  $\Psi(\mathbf{r}, t)$  s'écrit :

$$\left( V + mc^2\beta + \frac{\beta}{2m} ((\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2 - e\hbar\boldsymbol{\Sigma} \cdot \mathbf{B}) \right) \Psi(\mathbf{r}, t) = i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\mathbf{r}, t).$$

On sépare ensuite les grandes et petites composantes. Le hamiltonien transformé est composé d'opérateurs exclusivement pairs à chaque ordre en  $(1/m)$ , la projection sur les composantes de l'électron  $u(\mathbf{r}, t)$  et du positron  $v(\mathbf{r}, t)$  modifie l'opérateur hamiltonien en utilisant les transpositions suivantes :  $\boldsymbol{\Sigma} \rightarrow \boldsymbol{\sigma}$  et  $\beta \rightarrow 1$  pour l'électron ( $\beta \rightarrow -1$  pour le positron )

$$\left( V + mc^2 + \frac{(\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2}{2m} - \frac{e\hbar}{2m}\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B} \right) u(\mathbf{r}, t) = i\hbar \frac{\partial}{\partial t} u(\mathbf{r}, t) \quad (1.66)$$

$$\left( V - mc^2 - \frac{(\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2}{2m} + \frac{e\hbar}{2m}\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B} \right) v(\mathbf{r}, t) = i\hbar \frac{\partial}{\partial t} v(\mathbf{r}, t). \quad (1.67)$$

Le passage à la **limite non relativiste** se réalise en supposant que la quantité de mouvement est faible devant la grandeur caractéristique  $mc$  et que l'énergie d'interaction coulombienne est faible devant l'énergie de masse :

i)  $\| \mathbf{p} - e\mathbf{A} \| \ll mc$

ii)  $e\Phi = V \ll mc^2$ .

Compte tenu de ces deux critères on voit qu'il suffit de négliger la quantité  $mc^2$  dans l'équation (1.66) pour retrouver l'équation de Schrödinger-Pauli :

$$\left( V + \frac{(\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2}{2m} - \frac{e\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B} \right) u(\mathbf{r}, t) = i\hbar \frac{\partial}{\partial t} u(\mathbf{r}, t). \quad (1.68)$$

Si on développe l'opérateur d'énergie cinétique on obtient trois termes :

$$\frac{(\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2}{2m} = \frac{\mathbf{p}^2}{2m} - \frac{e}{2m} (\mathbf{p} \cdot \mathbf{A} + \mathbf{A} \cdot \mathbf{p}) + \frac{e^2 \mathbf{A}^2}{2m}$$

Le premier représente l'énergie cinétique d'une particule libre. Le second est un terme d'**interaction magnétique**. En effet supposons que le potentiel vecteur  $\mathbf{A}$  soit relié à un champ magnétique statique uniforme  $\mathbf{B}$  tel que  $\mathbf{A} = \frac{\mathbf{B} \wedge \mathbf{r}}{2}$  de manière à vérifier l'identité  $\nabla \wedge \mathbf{A} = \nabla \wedge \left( \frac{\mathbf{B} \wedge \mathbf{r}}{2} \right) = \mathbf{B}$ , avec la définition du moment cinétique orbital  $\mathbf{l} = \mathbf{r} \wedge \mathbf{p}$  on écrit :

$$-\frac{e}{m} \mathbf{p} \cdot \mathbf{A} = -\frac{e}{2m} \mathbf{p} \cdot (\mathbf{B} \wedge \mathbf{r}) = -\frac{e}{2m} (\mathbf{r} \wedge \mathbf{p}) \cdot \mathbf{B} = -\gamma \mathbf{l} \cdot \mathbf{B} = -\boldsymbol{\mu}_{orb} \cdot \mathbf{B}$$

où ( $\gamma = \frac{e}{2m} < 0$ ) est le facteur de Larmor et  $\boldsymbol{\mu}_{orb} = \gamma \mathbf{l}$  le moment magnétique orbital. Sous cette forme le terme dipolaire décrit le **paramagnétisme électronique du moment orbital**. Le moment cinétique décrit un mouvement de précession autour de  $\mathbf{B}$  à la vitesse angulaire  $\boldsymbol{\Omega} = -\gamma \mathbf{B}$  :

$$\frac{d\mathbf{l}}{dt} = -\gamma \mathbf{l} \wedge \mathbf{B} = \mathbf{l} \wedge \boldsymbol{\Omega}.$$

Le dernier terme est associé au diamagnétisme, effet magnétique faible qui s'oppose au champ.

$$\frac{e^2 \mathbf{A}^2}{2m} = \frac{e^2}{2m} (\mathbf{B} \wedge \mathbf{r}) \cdot \mathbf{A} = \frac{e}{2m} (\mathbf{r} \wedge e\mathbf{A}) \cdot \mathbf{B} = \gamma \mathbf{L}_{dia} \cdot \mathbf{B}.$$

Enfin le dernier terme de l'équation (1.68) est associé au couplage Zeeman entre le moment magnétique de spin et le champ magnétique. Le vecteur  $\mathbf{S} = \frac{\sigma \hbar}{2}$  effectue un mouvement de précession autour de  $\mathbf{B}$  à la vitesse angulaire  $\boldsymbol{\Omega} = -\frac{e}{m} \mathbf{B}$ , le phénomène décrit alors le **paramagnétisme de spin**.

$$\begin{cases} U = -\frac{e\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B} = -\frac{e}{m} \mathbf{S} \cdot \mathbf{B} \\ \frac{d\mathbf{S}}{dt} = \mathbf{S} \wedge \boldsymbol{\Omega} \end{cases}.$$

### Second ordre : interaction de Darwin et couplage spin-orbite

Pour déterminer  $H^{(2)}$  il faut préalablement déterminer l'opérateur  $\hat{T}$  qui découle de la définition de (1.34) introduite dans la section précédente. Ainsi :

$$\begin{aligned} \hat{T} &= \frac{i}{\hbar} [V, T] + \partial_t T = \frac{i}{\hbar} [e\Phi, c\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A})] + \partial_t (c\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A})) \\ &= \frac{iec}{\hbar} \boldsymbol{\alpha} \cdot [\Phi, \mathbf{p}] - ec\boldsymbol{\alpha} \cdot \partial_t \mathbf{A} = ec\boldsymbol{\alpha} \cdot (-\nabla \Phi - \partial_t \mathbf{A}) \\ &= ec\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{E}. \end{aligned}$$

On peut ensuite calculer le commutateur  $i[T, \dot{T}]$  :

$$\begin{aligned}
i[T, \dot{T}] &= i[c(\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A})), ec(\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{E})] \\
&= iec^2((\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A}))(\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{E}) - (\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{E})(\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A}))) \\
&= iec^2((\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \cdot \mathbf{E} + i\boldsymbol{\Sigma} \cdot ((\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \wedge \mathbf{E}) - \mathbf{E} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) - i\boldsymbol{\Sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}))) \\
&= iec^2([\mathbf{p} - e\mathbf{A}, \mathbf{E}] + i\boldsymbol{\Sigma} \cdot ((\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \wedge \mathbf{E}) - (\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}))) \\
&= ec^2(\hbar\nabla \cdot \mathbf{E} + \boldsymbol{\Sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) - (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \wedge \mathbf{E})). \tag{1.69}
\end{aligned}$$

En projetant l'opérateur sur la partie électronique  $\boldsymbol{\Sigma} \rightarrow \boldsymbol{\sigma}$  et  $\beta \rightarrow 1$  on obtient le hamiltonien du second ordre :

$$H^{(2)} = -\frac{e\hbar^2}{8m^2c^2}\nabla \cdot \mathbf{E} - \frac{e\hbar}{8m^2c^2}\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) - (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \wedge \mathbf{E}). \tag{1.70}$$

Le premier terme est appelé **interaction de Darwin** et s'interprète comme une correction à l'énergie potentielle due au phénomène de Zitterbewegung, littéralement "mouvement de tremblement" (voir Annexe *Zitterbewegung*). Le long de sa trajectoire, l'électron subit un mouvement d'oscillation dans une sphère dont l'amplitude est de l'ordre de la longueur d'onde Compton  $\lambda_c = \frac{h}{mc}$ . Si on réalise un développement limité de l'énergie potentielle autour de  $\mathbf{r}$  à  $\Delta\mathbf{r} = \frac{h}{2mc}$  près on a :

$$V(\mathbf{r} + \Delta\mathbf{r}) = e\Phi(\mathbf{r} + \Delta\mathbf{r}) = e\Phi(\mathbf{r}) + e\Delta\mathbf{r} \frac{\partial\Phi}{\partial r} + \frac{e}{2}(\Delta\mathbf{r})^2 \frac{\partial^2\Phi}{\partial r^2} + \vartheta(\Delta\mathbf{r}^{-3})$$

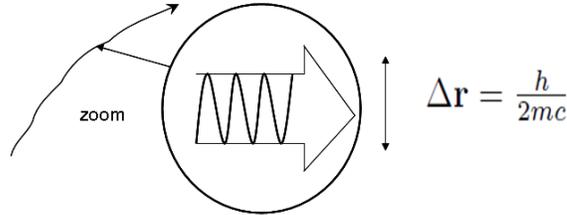


FIG. 1.1 – Le mouvement de tremblement : Zitterbewegung

En moyenne les éléments impairs du développement sont nuls. Le terme du second ordre peut s'identifier au terme de Darwin avec  $\mathbf{E} = -\nabla\Phi$  :

$$\langle V(\mathbf{r} + \Delta\mathbf{r}) \rangle = e\Phi(\mathbf{r}) + \frac{e\hbar^2}{8m^2c^2} \frac{\partial^2\Phi}{\partial r^2} \approx e\Phi + \frac{e\hbar^2}{8m^2c^2} \Delta\Phi.$$

Le second terme se présente comme un terme d'interaction entre le spin et un champ magnétique **effectif** composé des opérateurs  $\mathbf{E}$ ,  $\mathbf{p}$  et  $\mathbf{A}$ . Il est appelé terme de **couplage spin-orbite** et peut être présenté sous plusieurs formes vectorielles. Transformons tout d'abord le champ effectif à l'aide d'une fonction d'onde  $\phi$  :

$$\begin{aligned}
(\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) - (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \wedge \mathbf{E})\phi &= (\mathbf{E} \wedge \mathbf{p} - \mathbf{p} \wedge \mathbf{E} - \mathbf{E} \wedge e\mathbf{A} + e\mathbf{A} \wedge \mathbf{E})\phi \\
&= (\mathbf{E} \wedge \mathbf{p}\phi - \mathbf{p}\phi \wedge \mathbf{E} - \mathbf{p} \wedge \mathbf{E}\phi - (\mathbf{E} \wedge e\mathbf{A})\phi + (e\mathbf{A} \wedge \mathbf{E})\phi) \\
&= (\mathbf{E} \wedge \mathbf{p}\phi + \mathbf{E} \wedge \mathbf{p}\phi - \mathbf{p} \wedge \mathbf{E}\phi - (\mathbf{E} \wedge e\mathbf{A})\phi - (\mathbf{E} \wedge e\mathbf{A})\phi) \\
&= (2\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) - \mathbf{p} \wedge \mathbf{E})\phi \\
&= (2\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) + i\hbar\nabla \wedge \mathbf{E})\phi,
\end{aligned}$$

on obtient alors deux termes :

$$H'_{soc(2)} = -\frac{e\hbar}{4m^2c^2}\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A})) - \frac{ie\hbar^2}{8m^2c^2}\boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \wedge \mathbf{E}). \quad (1.71)$$

Le premier terme s'interprète à l'aide d'arguments semi-classiques de composition de référentiels. Imaginons le déplacement d'un électron à la vitesse  $\mathbf{v}$  dans un référentiel  $\mathbf{R}$  siège d'un champ électrique  $\mathbf{E}$  statique ( $\mathbf{A} = 0$ ; Fig 1.2a). Dans son référentiel propre  $\mathbf{R}'$ , l'électron en mouvement relatif par rapport à  $\mathbf{R}$  ressent un champ magnétique  $\mathbf{B}' = -\frac{\mathbf{v}}{c^2} \wedge \mathbf{E}$ . Il apparaît un effet de type Zeeman entre le moment magnétique de spin et le champ  $\mathbf{B}'$  :

$$-\frac{e\hbar}{2m}\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B}' = -\frac{e\hbar}{2m}\boldsymbol{\sigma} \cdot \left(\mathbf{E} \wedge \frac{\mathbf{v}}{c^2}\right) = -\frac{e\hbar}{2m^2c^2}\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge \mathbf{p}) \quad (1.72)$$

et le vecteur  $\mathbf{S} = \frac{\sigma\hbar}{2}$  décrit dans  $\mathbf{R}'$  un mouvement de précession autour de  $\mathbf{B}'$  à la vitesse angulaire  $\boldsymbol{\Omega}'$  :

$$\left(\frac{d\mathbf{S}}{dt}\right)_{\mathbf{R}'} = \mathbf{S} \wedge \boldsymbol{\Omega}' \quad \boldsymbol{\Omega}' = \frac{e}{m^2c^2}(\mathbf{p} \wedge \mathbf{E}). \quad (1.73)$$

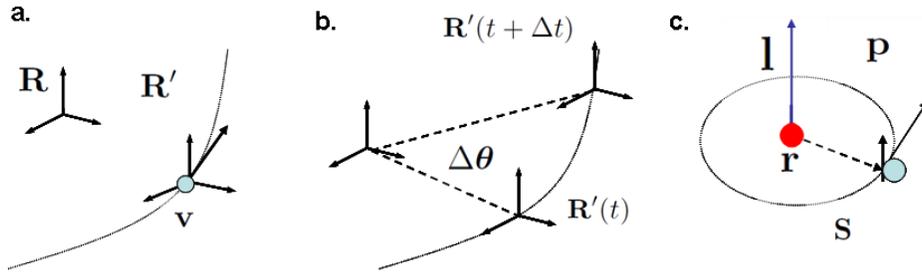


FIG. 1.2 –

L'explication physique du phénomène semble être satisfaisante car l'opérateur (1.73) obtenu est identique au premier terme de (1.71) (avec  $\mathbf{A} = 0$ ) à un **facteur 2 près au dénominateur** c'est à dire que la vitesse angulaire de précession  $\boldsymbol{\Omega}_{FW}$  prédite par le développement relativiste de FW pour le premier terme de (1.71) vaut la moitié de celle obtenue par le raisonnement précédent :  $\boldsymbol{\Omega}' = 2\boldsymbol{\Omega}_{FW}$ .

Cette différence provient du fait que le référentiel de l'électron  $\mathbf{R}'$  n'est pas galiléen car il est uniformément accéléré par l'action du champ électrique  $\mathbf{E}$ . L'électron ressent dans son référentiel propre une vitesse angulaire supplémentaire  $\boldsymbol{\Omega}_T$  que l'on peut relier aux équations du mouvement de  $\mathbf{S}$  dans les référentiels  $\mathbf{R}$  et  $\mathbf{R}'$  par la relation de composition des référentiels [76] :

$$\left(\frac{d\mathbf{S}}{dt}\right)_{\mathbf{R}} = \left(\frac{d\mathbf{S}}{dt}\right)_{\mathbf{R}'} + \boldsymbol{\Omega}_T \wedge \mathbf{S} = \mathbf{S} \wedge \boldsymbol{\Omega}' + \boldsymbol{\Omega}_T \wedge \mathbf{S} = \mathbf{S} \wedge (\boldsymbol{\Omega}' - \boldsymbol{\Omega}_T). \quad (1.74)$$

La prise en compte de cet effet relativiste supplémentaire fut étudié par **Thomas** (1927). Dans [3] on donne à l'aide de la transformation lorentzienne des coordonnées une expression de l'angle  $\Delta\theta$  parcouru par  $\mathbf{R}'$  entre  $t$  et  $t + \Delta t$  par rapport à l'origine du référentiel  $\mathbf{R}$  (Fig 1.2b). Une approximation au deuxième ordre en  $1/c$  conduit à l'expression suivante :

$$\Delta\theta = \frac{1}{2c^2}\mathbf{v} \wedge \mathbf{a}\Delta t$$

où  $\mathbf{a}$  représente l'accélération de la particule et  $\mathbf{v}$  sa vitesse. On remplace ces deux grandeurs par  $\mathbf{a} = \frac{e\mathbf{E}}{m}$  et  $\mathbf{v} = \frac{\mathbf{p}}{m}$  et définissant le vecteur de vitesse angulaire selon  $\boldsymbol{\Omega}_T = \left(\frac{\Delta\theta}{\Delta t}\right)_{\Delta t \rightarrow 0}$  on obtient comme expression :

$$\boldsymbol{\Omega}_T = \frac{e}{2m^2c^2} \mathbf{p} \wedge \mathbf{E} = \frac{\boldsymbol{\Omega}'}{2}$$

que l'on remplace dans (1.74) soit :

$$\left(\frac{d\mathbf{S}}{dt}\right)_R = \mathbf{S} \wedge \left(\boldsymbol{\Omega}' - \frac{\boldsymbol{\Omega}'}{2}\right) = \mathbf{S} \wedge \boldsymbol{\Omega}_{FW}.$$

Ainsi dans le référentiel du laboratoire le moment de spin précesse bien à la vitesse angulaire  $\boldsymbol{\Omega}_{FW}$  prédite par le développement de FW.

Ensuite quand à la **dénomination de spin-orbite** elle vient de l'explication suivante. Supposons que le champ électrique soit un champ à symétrie sphérique de telle sorte que  $\mathbf{E} = -\nabla\Phi = -\frac{\mathbf{r}\partial\Phi(r)}{r\partial r}$  (Fig 1.2c) le premier terme de (1.71) se transforme selon :

$$-\frac{e\hbar}{4m^2c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot \left(-\frac{\mathbf{r}\partial\Phi(r)}{r\partial r} \wedge \mathbf{p}\right) = \frac{e}{2m^2c^2r} \frac{\partial\Phi(r)}{\partial r} \left(\frac{\hbar\boldsymbol{\sigma}}{2}\right) \cdot (\mathbf{r} \wedge \mathbf{p}) = \xi_{SO} \mathbf{S} \cdot \mathbf{l}$$

et l'on voit apparaître un **couplage entre le moment cinétique orbital et le moment cinétique de spin**.

Le deuxième terme de (1.71) est particulier dans la mesure où il dépend du nombre imaginaire  $i$  et décrit alors un **opérateur non-hermitique**. Il décrit un couplage entre le moment cinétique de spin et le rotationnel du champ électrique  $\nabla \wedge \mathbf{E}$  qui traduirait en effet de non homogénéité spatiale du champ électrique. Ce terme est nul pour un champ à symétrie sphérique. Cependant en utilisant l'équation de Maxwell-Faraday on peut écrire :

$$\nabla \wedge \mathbf{E} = -\frac{\partial\mathbf{B}}{\partial t} \quad \Leftrightarrow \quad -\frac{ie\hbar^2}{8m^2c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \wedge \mathbf{E}) = \frac{ie\hbar^2}{8m^2c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot \frac{\partial\mathbf{B}}{\partial t}$$

et le terme s'interprète comme un **couplage Zeeman avec la dérivée temporelle du champ magnétique**.

On notera pour l'ensemble des termes du second ordre en  $(1/m)$  l'expression suivante :

$$H'^{(2)} = -\frac{e\hbar^2}{8m^2c^2} \nabla \cdot \mathbf{E} - \frac{e\hbar}{4m^2c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A})) + \frac{ie\hbar^2}{8m^2c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot \frac{\partial\mathbf{B}}{\partial t}. \quad (1.75)$$

### Troisième ordre : correction de l'énergie cinétique et dépendance temporelle explicite du champ électrique

La correction relativiste du troisième ordre en  $(1/m)$  contient deux termes :

$$H'^{(3)} = -\frac{\beta T^4}{8m^3c^6} - \frac{\hbar^2\beta}{16m^3c^6} \{T, \ddot{T}\}. \quad (1.76)$$

Le premier élément est fonction de l'opérateur  $T^4$ . On le détermine facilement comme produit  $T^2 \cdot T^2$  et tenant compte de la non commutativité des opérateurs on obtient :

$$\begin{aligned} T^4 &= (c^2(\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2 - e\hbar c^2 \boldsymbol{\Sigma} \cdot \mathbf{B})(c^2(\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2 - e\hbar c^2 \boldsymbol{\Sigma} \cdot \mathbf{B}) \\ &= c^4(\mathbf{p} - e\mathbf{A})^4 - e\hbar c^4 \{(\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2, \boldsymbol{\Sigma} \cdot \mathbf{B}\} + (e\hbar)^2 c^4 (\boldsymbol{\Sigma} \cdot \mathbf{B})^2. \end{aligned} \quad (1.77)$$

Le second terme contient l'opérateur  $\ddot{T}$  que l'on détermine avec la formule :

$$\ddot{T} = \frac{i}{\hbar}[V, \dot{T}] + \partial_t \dot{T} = ec\boldsymbol{\alpha} \cdot \partial_t \mathbf{E}.$$

On calcule ensuite l'anti-commutateur à l'aide de la formule de Dirac :

$$\begin{aligned} \{T, \ddot{T}\} &= \{c\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A}), ec\boldsymbol{\alpha} \cdot \partial_t \mathbf{E}\} \\ &= ec^2((\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A}))(\boldsymbol{\alpha} \cdot \partial_t \mathbf{E}) + (\boldsymbol{\alpha} \cdot \partial_t \mathbf{E})(\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A}))) \\ &= ec^2((\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \cdot \partial_t \mathbf{E} + i\boldsymbol{\Sigma} \cdot ((\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \wedge \partial_t \mathbf{E}) + \partial_t \mathbf{E} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) + i\boldsymbol{\Sigma} \cdot (\partial_t \mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}))) \\ &= ec^2(\{\mathbf{p} - e\mathbf{A}, \partial_t \mathbf{E}\} + i\boldsymbol{\Sigma} \cdot ((\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \wedge \partial_t \mathbf{E}) + (\partial_t \mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}))). \end{aligned} \quad (1.78)$$

En remplaçant (1.77) et (1.78) dans (1.76) et en projetant sur les composantes de l'électron ( $\boldsymbol{\Sigma} \rightarrow \sigma$ ,  $\beta \rightarrow 1$ ) on obtient une forme explicite pour  $H'^{(3)}$  que l'on divise en deux groupes de termes (1.79) et (1.80) :

$$H'^{(3)} = -\frac{(\mathbf{p} - e\mathbf{A})^4}{8m^3c^2} + \frac{e\hbar}{4m^2c^2} \left\{ \frac{(\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2}{2m}, \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B} \right\} - \left( \frac{e\hbar}{2m} \right)^2 \frac{\mathbf{B}^2}{2mc^2} \quad (1.79)$$

$$-\frac{e\hbar^2}{16m^3c^4} \left\{ (\mathbf{p} - e\mathbf{A}), \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{E} \right\} - \frac{ie\hbar^2}{16m^3c^4} \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) + (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \wedge \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{E} \right). \quad (1.80)$$

Le premier groupe (1.79) corrige l'énergie cinétique de l'électron en présence d'un champ magnétique statique et résulte du fait que l'on réalise une approximation de l'expression relativiste de l'énergie. Pour le montrer considérons tout d'abord un électron libre sans champ électromagnétique ( $\mathbf{A} = 0$  et  $\Phi = 0$ ). Les seuls opérateurs non nuls qui apparaissent dans le hamiltonien transformé sont :

$$\begin{aligned} H'_{(\mathbf{A}=0)}^{(1)} &= mc^2 + \frac{\mathbf{p}^2}{2mc^2} \\ H'_{(\mathbf{A}=0)}^{(3)} &= (1.80)_{(\mathbf{A}=0)} = -\frac{\mathbf{p}^4}{8m^3c^2}, \end{aligned}$$

et proviennent sans ambiguïté du développement au troisième ordre en  $(1/m)$  de l'expression relativiste de l'énergie  $E^2 = m^2c^4 + \mathbf{p}^2c^2$ . En effet :

$$E = (m^2c^4 + \mathbf{p}^2c^2)^{1/2} = mc^2 \left( 1 + \frac{\mathbf{p}^2}{m^2c^2} \right)^{1/2} \approx mc^2 + \frac{\mathbf{p}^2}{2mc^2} - \frac{\mathbf{p}^4}{8m^3c^6} + \vartheta(m^{-4}) \quad (1.81)$$

où le terme  $\mathbf{p}^2c^2$  est compatible avec l'expression du carré de l'énergie cinétique d'une particule libre dans le formalisme de Dirac :  $T^2 = (c\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{p}) \cdot (c\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{p}) = \mathbf{p}^2c^2$ .

Considérons à présent le cas général d'un électron en présence d'un champ électromagnétique dépendant du temps et écrivons l'expression totale du hamiltonien transformé au troisième ordre en  $(1/m)$  en regroupant les termes de la manière suivante :

$$H' = \underbrace{\beta \left( mc^2 + \frac{T^2}{2mc^2} - \frac{T^4}{8m^3c^6} \right)}_{f(\mathbf{p}, \mathbf{A})} + V - \underbrace{\frac{i\hbar}{8m^2c^4}[T, \dot{T}] - \frac{\hbar^2\beta}{16m^3c^6}\{T, \ddot{T}\}}_{g(\Phi, \mathbf{p}, \mathbf{A}, \partial_t \mathbf{A})}.$$

On voit bien que le regroupement  $f(\mathbf{p}, \mathbf{A})$  est analogue au développement (1.81) si l'on substitue  $\mathbf{p}^2c^2$  par  $T^2 = c^2(\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2 - e\hbar c^2\boldsymbol{\Sigma} \cdot \mathbf{B}$  où  $T$  est l'expression de l'énergie cinétique en présence d'un champ magnétique dans le formalisme de Dirac ( $T = c\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A})$ ). Le regroupement  $g(\Phi, \mathbf{p}, \mathbf{A}, \partial_t \mathbf{A})$  au vu des

formules (1.75) et (1.80) n'admet qu'un seul et unique terme dépendant d'un champ magnétique statique qui est celui du couplage spin-orbite ( $\boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \Phi \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}))$ ) dans le cas précis où le champ électrique est décrit par un potentiel scalaire  $\Phi$  non uniforme. On peut donc affirmer que le groupe (1.79) corrige bien l'énergie cinétique de l'électron, lorsque celui est en présence d'un **champ magnétique statique uniquement**.

Examinons à présent les éléments du groupe (1.80). Ils ont la particularité de dépendre explicitement de la **dérivée temporelle du champ électrique**  $\partial_t \mathbf{E}$ !! Ils représentent une correction éventuelle à prendre en compte lorsque le champ électrique externe dépend du temps mais dont l'interprétation physique n'est pas évidente et dont la pertinence reste encore à discuter.

Le premier se présente comme un anti-commutateur de l'opérateur quantité de mouvement et de la dérivée temporelle du champ électrique dont la signification physique est difficile à cerner.

En revanche l'opérateur contenant le spin est plus abordable. Il est également non hermitique et semble être un couplage de type Zeeman avec un champ effectif contenant les opérateurs  $\partial_t \mathbf{E}$ ,  $\mathbf{p}$  et  $\mathbf{A}$ . On le transforme à l'aide d'une fonction d'onde  $\phi$  :

$$\begin{aligned}
(\partial_t \mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) + (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \wedge \partial_t \mathbf{E}) \phi &= (\partial_t \mathbf{E} \wedge \mathbf{p} + \mathbf{p} \wedge \partial_t \mathbf{E} - \partial_t \mathbf{E} \wedge e\mathbf{A} - e\mathbf{A} \wedge \partial_t \mathbf{E}) \phi \\
&= (\partial_t \mathbf{E} \wedge \mathbf{p} \phi + \mathbf{p} \phi \wedge \partial_t \mathbf{E} + \mathbf{p} \wedge \partial_t \mathbf{E} \phi) \\
&= (\partial_t \mathbf{E} \wedge \mathbf{p} \phi - \partial_t \mathbf{E} \wedge \mathbf{p} \phi + \mathbf{p} \wedge \partial_t \mathbf{E} \phi) \\
&= \mathbf{p} \wedge \partial_t \mathbf{E} \phi \\
&= -i\hbar \nabla \wedge \partial_t \mathbf{E} \phi.
\end{aligned}$$

Le champ effectif obtenu ne contient pas de "terme d'orbite" comme au second ordre mais un terme d'inhomogénéité spatiale concernant la dérivée temporelle du champ électrique. On remarquera la disparition de l'aspect non hermitique. Comme précédemment on utilise l'équation de Maxwell-Faraday  $\nabla \wedge \mathbf{E} = -\partial_t \mathbf{B}$  pour transformer l'opérateur rotationnel, ainsi :

$$\begin{aligned}
-\frac{i\hbar^2}{16m^3c^4} \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) + (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \wedge \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{E} \right) &= -\frac{e\hbar^3}{16m^3c^4} \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \nabla \wedge \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \right) \\
&= \frac{e\hbar^3}{16m^3c^4} \boldsymbol{\sigma} \cdot \frac{\partial^2 \mathbf{B}}{\partial t^2}
\end{aligned}$$

et le terme s'interprète comme **un couplage Zeeman avec la dérivée temporelle seconde du champ magnétique**.

On notera pour l'ensemble des termes du troisième ordre en  $(1/m)$  l'expression de  $H'^{(3)}$  suivante :

$$\begin{aligned}
H'^{(3)} &= -\frac{(\mathbf{p} - e\mathbf{A})^4}{8m^3c^2} + \frac{e\hbar}{4m^2c^2} \left\{ \frac{(\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2}{2m}, \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B} \right\} - \left( \frac{e\hbar}{2m} \right)^2 \frac{\mathbf{B}^2}{2mc^2} \\
&\quad - \frac{e\hbar^2}{16m^3c^4} \left\{ (\mathbf{p} - e\mathbf{A}), \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{E} \right\} + \frac{e\hbar^3}{16m^3c^4} \boldsymbol{\sigma} \cdot \frac{\partial^2 \mathbf{B}}{\partial t^2}.
\end{aligned} \tag{1.82}$$

### 1.3.2 Couplage du spin avec le champ électromagnétique

Dans ce paragraphe on se consacre aux termes de couplage entre les degrés de libertés de spin et le champ électromagnétique et on note  ${}^\sigma H'$  le hamiltonien d'interaction. Ainsi d'après (1.68), (1.80)

et (1.82) on obtient :

$$\begin{aligned} \sigma H' &= -\frac{e\hbar}{2m}\boldsymbol{\sigma}\cdot\mathbf{B} - \frac{e\hbar}{4m^2c^2}\boldsymbol{\sigma}\cdot(\mathbf{E}\wedge(\mathbf{p}-e\mathbf{A})) + \frac{ie\hbar^2}{8m^2c^2}\boldsymbol{\sigma}\cdot\frac{\partial\mathbf{B}}{\partial t} \\ &\quad + \frac{e\hbar^3}{16m^3c^4}\boldsymbol{\sigma}\cdot\frac{\partial^2\mathbf{B}}{\partial t^2} + \frac{e\hbar}{4m^2c^2}\left\{\frac{(\mathbf{p}-e\mathbf{A})^2}{2m},\boldsymbol{\sigma}\cdot\mathbf{B}\right\}. \end{aligned} \quad (1.83)$$

On distingue ensuite dans l'équation (1.83) deux types d'opérateurs. On appellera termes de **couplage direct** (notés  $\sigma H'^d$ ) les termes qui s'écrivent sous la forme bien connue de l'énergie d'interaction dipolaire d'un moment magnétique de spin avec un champ magnétique effectif  $\mathbf{B}_{\text{eff}}$  :

$$-\frac{e\hbar}{2m}\boldsymbol{\sigma}\cdot\mathbf{B}_{\text{eff}},$$

et on appellera termes de **couplage indirect** (notés  $\sigma H'^i$ ) les éléments représentant une interaction dipolaire magnétique mais pondérée par le produit d'un opérateur quelconque  $X$  :

$$(\boldsymbol{\sigma}\cdot\mathbf{B}_{\text{eff}})X.$$

On sépare (1.83) en deux groupes soit :

$$\begin{aligned} \sigma H'^d &= -\frac{e\hbar}{2m}\boldsymbol{\sigma}\cdot\mathbf{B} - \frac{e\hbar}{4m^2c^2}\boldsymbol{\sigma}\cdot(\mathbf{E}\wedge(\mathbf{p}-e\mathbf{A})) + \frac{ie\hbar^2}{8m^2c^2}\boldsymbol{\sigma}\cdot\frac{\partial\mathbf{B}}{\partial t} + \frac{e\hbar^3}{16m^3c^4}\boldsymbol{\sigma}\cdot\frac{\partial^2\mathbf{B}}{\partial t^2} \\ \sigma H'^i &= \frac{e\hbar}{4m^2c^2}\left\{\frac{(\mathbf{p}-e\mathbf{A})^2}{2m},\boldsymbol{\sigma}\cdot\mathbf{B}\right\}. \end{aligned}$$

Concernant les **termes directs** il existe un terme de couplage à chaque ordre en  $(1/m)$  :

$$\sigma H'^d = \underbrace{-\frac{e\hbar}{2m}\boldsymbol{\sigma}\cdot\mathbf{B}}_{\text{ordre1}} - \underbrace{\frac{e\hbar}{8m^2c^2}\boldsymbol{\sigma}\cdot\left(2\mathbf{E}\wedge(\mathbf{p}-e\mathbf{A}) - i\hbar\cdot\frac{\partial\mathbf{B}}{\partial t}\right)}_{\text{ordre2}} + \underbrace{\frac{e\hbar^3}{16m^3c^4}\boldsymbol{\sigma}\cdot\frac{\partial^2\mathbf{B}}{\partial t^2}}_{\text{ordre3}}.$$

On voit d'après les formules (1.65), (1.69) et (1.78) qu'ils proviennent chacun de la partie spinorielle d'une formule de Dirac du type :  $(\boldsymbol{\alpha}\cdot\mathbf{X})(\boldsymbol{\alpha}\cdot\mathbf{Y}) = \mathbf{X}\cdot\mathbf{Y} + i\boldsymbol{\Sigma}\cdot(\mathbf{X}\wedge\mathbf{Y})$ . L'effet Zeeman qui est le premier terme direct provient de :

$$\frac{\beta T^2}{2mc^2} \quad \left\{ \begin{array}{l} \mathbf{X} = c(\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \\ \mathbf{Y} = c(\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \end{array} \right.$$

Les termes du second ordre sont associés au couplage spin-orbite et au couplage avec la dérivée temporelle première du champ magnétique. Ils proviennent du commutateur :

$$-\frac{i\hbar}{8m^2c^4}[T, \dot{T}] \quad \left\{ \begin{array}{l} \mathbf{X} = c(\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \\ \mathbf{Y} = ec\mathbf{E} \end{array} \right.$$

Au troisième ordre le couplage opère uniquement avec la dérivée temporelle seconde du champ magnétique issu de l'anticommutateur :

$$-\frac{\hbar^2\beta}{16m^3c^6}\{T, \ddot{T}\} \quad \left\{ \begin{array}{l} \mathbf{X} = c(\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \\ \mathbf{Y} = ec\dot{\mathbf{E}} \end{array} \right.$$

Enfin, l'unique **terme indirect** :

$$\sigma H'^i = \frac{e\hbar}{4m^2c^2}\frac{(\mathbf{p}-e\mathbf{A})^2}{2m}(\boldsymbol{\sigma}\cdot\mathbf{B}) + \frac{e\hbar}{4m^2c^2}(\boldsymbol{\sigma}\cdot\mathbf{B})\frac{(\mathbf{p}-e\mathbf{A})^2}{2m}$$

provient de la correction à l'énergie cinétique au troisième ordre  $-\frac{\beta T^4}{8m^3c^6}$ . Mathématiquement il résulte du calcul de  $T^2\cdot T^2$  ce qui en terme de formule de Dirac correspond aux termes croisés de la multiplication entre elles d'identités de Dirac :  $(\boldsymbol{\alpha}\cdot\mathbf{X})(\boldsymbol{\alpha}\cdot\mathbf{Y})(\boldsymbol{\alpha}\cdot\mathbf{Z})(\boldsymbol{\alpha}\cdot\mathbf{T})$  avec ici  $\mathbf{X} = \mathbf{Y} = \mathbf{Z} = \mathbf{T} = c(\mathbf{p} - e\mathbf{A})$ .

### 1.3.3 Analyses et perspectives

On met en évidence dans cette partie une éventuelle systématique mathématique qui apparaît dans les opérateurs transformés du développement de Foldy-Wouthuysen ainsi que pour l'expression des termes de couplage direct.

#### Développement en série entière des opérateurs transformés contenant les termes de couplage direct :

On peut faire quelques remarques concernant la gènese des opérateurs du développement de FW qui contribuent à créer des termes de couplage direct. Parmi les opérateurs en puissance de  $T^2$  qui proviendraient d'un développement du type :

$$H'_T = mc^2\beta \left(1 + \frac{T^2}{m^2c^2}\right)^{1/2} \approx mc^2\beta + \frac{\beta T^2}{2mc^2} - \frac{\beta T^4}{8m^3c^6} + \dots,$$

il n'y aurait que l'opérateur  $\frac{\beta T^2}{2mc^2}$  qui puisse donner un terme de couplage direct. Les termes d'ordre supérieurs ( $T^4, \dots$ ) sont tous des termes indirects. Cependant on peut remarquer que l'on peut écrire  $\frac{\beta T^2}{2mc^2}$  selon :

$$\frac{\beta T^2}{2mc^2} = \frac{\beta}{4mc^2} \{T, T\}.$$

Cette forme est intéressante car les termes de couplage direct du deuxième et troisième ordre en  $(1/m)$  proviennent de la partie spinorielle du commutateur  $[T, \dot{T}]$  ou de l'anticommutateur  $\{T, \ddot{T}\}$ . En mettant  $T^2$  sous la forme de l'anticommutateur  $\{T, T\}$  on remarque que les termes du premier et troisième ordre prennent une forme similaire et pourraient représenter les deux premiers termes d'un développement en série entière d'anti-commutateurs de  $T$  avec ses dérivées temporelles d'ordre pair :

$$\frac{\beta}{4mc^2} \{T, T\} - \frac{\hbar^2\beta}{16m^3c^6} \{T, \ddot{T}\} = \frac{\beta}{4mc^2} \sum_{n=0,2} \left(\frac{\beta\hbar}{2imc}\right)^n \left\{T, \frac{d^n}{dt^n}T\right\}. \quad (1.84)$$

Le terme du second ordre avec le commutateur ne permet pas à lui seul d'extrapoler un développement en série entière mais il pourrait être le premier terme d'un développement analogue avec cette fois des commutateurs de  $T$  et de ses dérivées temporelles d'ordre impair :

$$-\frac{i\hbar}{8m^2c^4} [T, \dot{T}] = \frac{\beta}{4mc^2} \sum_{n=1} \left(\frac{\beta\hbar}{2imc}\right)^n \left[T, \frac{d^n}{dt^n}T\right]. \quad (1.85)$$

Ainsi le hamiltonien transformé de FW au troisième ordre qui génère les éléments de couplage direct s'écrit :

$$H'_d = \frac{\beta}{4mc^2} \left( \sum_{n=0,2} \left(\frac{\beta\hbar}{2imc}\right)^n \left\{T, \frac{d^n}{dt^n}T\right\} + \sum_{n=1} \left(\frac{\beta\hbar}{2imc}\right)^n \left[T, \frac{d^n}{dt^n}T\right] \right). \quad (1.86)$$

#### Forme explicite du champ effectif :

En factorisant par le magnéon de Bohr on peut écrire l'ensemble des termes directs sous une forme plus compacte qui met en évidence une certaine régularité mathématique dans le champ effectif ressentit par le spin électronique :

$${}^\sigma H'_d = -\frac{e\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \mathbf{B} + \frac{1}{4m^2c^2} \left( 2\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) - i\hbar \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \right) - \frac{\hbar^2}{8m^2c^4} \frac{\partial^2 \mathbf{B}}{\partial t^2} \right). \quad (1.87)$$

On constate que le champ magnétique est présent à chaque ordre en  $(1/m)$  par l'intermédiaire de ses dérivées temporelles dont l'ordre augmente avec l'ordre du développement en  $(1/m)$ . En revanche le champ électrique n'est présent qu'au second ordre. On schématise l'analyse de la manière suivante :

Ordre en $(1/m)$	Champ magnétique	Champ électrique
1	$\mathbf{B}$	
2	$\partial_t \mathbf{B}$	$\mathbf{E} \wedge \mathbf{p}$
3	$\partial_{tt} \mathbf{B}$	

Présenté sous cet angle, le couplage direct entre le spin et le champ électromagnétique paraît suivre une logique pour le champ magnétique mais il est difficile d'extraire des informations concernant le champ électrique. C'est pourquoi...

### C'est quoi le projet ?

Au vu des systématiques et récurrences qui semblent apparaître dans les points précédents on se serait tenté de développer le hamiltonien transformé de FW au **quatrième et cinquième ordre** en  $(1/m)$  pour répondre aux questions suivantes :

- **Q1)** Existe-t-il des opérateurs transformés qui vérifient l'équation (1.86) pour les ordres supérieurs du développement ?
- **Q2)** Existe-t-il des termes de couplage direct qui apportent une contribution supplémentaire du champ électrique et/ou une contribution de la dérivée temporelle d'ordre trois du champ magnétique ?
- **Q3)** Existe-t-il d'autres termes de couplage indirect ?

La problématique est schématisée à l'aide du tableau suivant :

	Termes directs			Termes indirects
Ordre en $(1/m)$	Origine	Champ magnétique	Champ électrique	Origine
1	$\{T, T\}$	$\mathbf{B}$		
2	$[T, \dot{T}]$	$\partial_t \mathbf{B}$	$\mathbf{E} \wedge \mathbf{p}$	
3	$\{T, \ddot{T}\}$	$\partial_{tt} \mathbf{B}$		$T^4$
4	?	?	?	?
5	?	?	?	?

C'est pour répondre à ces questions que nous avons étendu la procédure récursive de la transformation de Foldy-Wouthuysen au cinquième ordre en  $(1/m)$  dans la section (1.2.4).

## 1.4 Etude du couplage entre les degrés de liberté de spin et le champ électromagnétique

« C'est loin mais c'est beau. »

Jacques Chirac

On utilise le développement de FW aux quatrième et cinquième ordre en  $(1/m)$  obtenu dans la section (1.2.4) pour répondre aux questions **Q1**, **Q2** et **Q3**. On étudie le hamiltonien sous sa forme transformée puis sous sa forme explicite. On met en évidence la possibilité de décrire les termes de couplage direct sous la forme d'un développement en série entière impliquant les variations temporelles du champ électromagnétique. On tente également de proposer une idée quand à la genèse des termes de couplage indirect. On analyse à la fin la validité des expressions obtenues dans le régime des hautes énergies.

### 1.4.1 Couplage direct

#### Etude du hamiltonien transformé

On rappelle les définitions du chapitre précédent. Les opérateurs conduisant à des éléments de couplage direct proviennent de la partie spinorielle d'une identité de Dirac  $:(\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{X})(\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{Y}) = \mathbf{X} \cdot \mathbf{Y} + i\boldsymbol{\Sigma} \cdot (\mathbf{X} \wedge \mathbf{Y})$ . Dans les formules (1.88) et (1.89) des opérateurs transformés de FW aux quatrième et cinquième ordre

en  $1/m$  :

$$H'^{(4)} = \frac{i\hbar}{16m^4c^8} \left( -\frac{7}{8}[\dot{T}, T^3] - \frac{5}{8}T[T, \dot{T}]T - \frac{\hbar^2}{2}[\ddot{T}, T] \right) \quad (1.88)$$

$$H'^{(5)} = \frac{\beta}{32m^5c^{10}} \left( 2T^6 + \frac{49\hbar^2}{24}\{T^3, \ddot{T}\} + \frac{17\hbar^2}{8}T\{T, \ddot{T}\}T + \frac{3}{2}\{T^2, \dot{T}^2\} \right. \\ \left. + \frac{5}{2}(T\dot{T}T\dot{T} + \dot{T}T\dot{T}T) + \frac{1}{4}\dot{T}T^2\dot{T} + \frac{85}{12}T\dot{T}^2T + \frac{\hbar^4}{2}\{T, \ddot{T}\} \right) \quad (1.89)$$

les seuls opérateurs exprimés sous cette forme sont  $[\ddot{T}, T]$  pour le quatrième ordre et  $\{T, \ddot{T}\}$  pour le cinquième ordre. Tous les autres, exprimés comme produit d'identités de Dirac donnent des termes de couplage indirect et sont étudiés dans le second paragraphe.

Ainsi au quatrième ordre en  $(1/m)$  on découvre :

$$\frac{i\hbar^3}{32m^4c^8}[T, \ddot{T}], \quad \begin{cases} \mathbf{X} = c(\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \\ \mathbf{Y} = ec\partial_{tt}\mathbf{E} \end{cases}$$

qui est bien un commutateur de  $T$  avec une dérivée temporelle impair d'ordre trois s'inscrivant dans le développement en série entière (1.85) extrapolé précédemment :

$$\frac{\beta}{4mc^2} \sum_{n=1,3} \left( \frac{\beta\hbar}{2imc} \right)^n \left[ T, \frac{d^n}{dt^n} T \right] = \frac{\beta}{4mc^2} \left( \left( \frac{\beta\hbar}{2imc} \right) \left[ T, \frac{d}{dt} T \right] + \left( \frac{\beta\hbar}{2imc} \right)^3 \left[ T, \frac{d^3}{dt^3} T \right] \right) \\ = -\frac{i\hbar}{8m^2c^4}[T, \dot{T}] + \frac{i\hbar^3}{32m^4c^8}[T, \ddot{T}]. \quad (1.90)$$

De la même manière au cinquième ordre en  $(1/m)$  :

$$\frac{\beta}{32m^5c^{10}} \frac{\hbar^4}{2} \{T, \ddot{T}\}, \quad \begin{cases} \mathbf{X} = c(\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \\ \mathbf{Y} = ec\partial_{ttt}\mathbf{E} \end{cases}$$

l'anticommutateur de  $T$  avec la dérivée temporelle pair d'ordre quatre respecte la forme du développement (1.84) proposé :

$$\frac{\beta}{4mc^2} \sum_{n=0,2,4} \left( \frac{\beta\hbar}{2imc} \right)^n \left\{ T, \frac{d^n}{dt^n} T \right\} = \frac{\beta}{4mc^2} \left( \left( \frac{\beta\hbar}{2imc} \right)^0 \left\{ T, \frac{d^0}{dt^0} T \right\} \right. \\ \left. + \left( \frac{\beta\hbar}{2imc} \right)^2 \left\{ T, \frac{d^2}{dt^2} T \right\} + \left( \frac{\beta\hbar}{2imc} \right)^4 \left\{ T, \frac{d^4}{dt^4} T \right\} \right) \\ = \frac{\beta}{4mc^2} \{T, T\} - \frac{\hbar^2\beta}{16m^3c^6} \{T, \ddot{T}\} + \frac{\beta\hbar^4}{64m^5c^{10}} \{T, \ddot{T}\}. \quad (1.91)$$

Cette première étude nous permet de répondre à la question **Q1**, le développement de FW au cinquième ordre donne des opérateurs transformés contenant des termes de couplage direct dont l'ensemble vérifie (1.86) et peut s'écrire sous la forme :

$$H'_d = \frac{\beta}{4mc^2} \left( \sum_{n=0,2,4} \left( \frac{\beta\hbar}{2imc} \right)^n \left\{ T, \frac{d^n}{dt^n} T \right\} + \sum_{n=1,3} \left( \frac{\beta\hbar}{2imc} \right)^n \left[ T, \frac{d^n}{dt^n} T \right] \right). \quad (1.92)$$

**Passage à la forme explicite**

On utilise les identités de Dirac pour faire apparaître explicitement le champ électromagnétique. Pour le terme du quatrième ordre en  $(1/m)$  :  $[T, \ddot{T}]$ , le calcul est identique à celui du commutateur  $[T, \dot{T}]$  à condition de remplacer  $\dot{T} = e\mathbf{c}\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{E}$  par  $\ddot{T} = e\mathbf{c}\boldsymbol{\alpha} \cdot \partial_{tt}\mathbf{E}$ . Ainsi on peut écrire directement :

$$i[T, \ddot{T}] = ec^2 (\hbar\nabla \cdot \partial_{tt}\mathbf{E} + \boldsymbol{\Sigma} \cdot (\partial_{tt}\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) - (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \wedge \partial_{tt}\mathbf{E})),$$

pour transformer le champ effectif à l'aide de l'équation de Maxwell-Faraday :

$$\begin{aligned} \partial_{tt}\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) - (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \wedge \partial_{tt}\mathbf{E} &= 2\partial_{tt}\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) + i\hbar\nabla \wedge \partial_{tt}\mathbf{E} \\ &= 2\partial_{tt}\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) - i\hbar\partial_{ttt}\mathbf{B}. \end{aligned}$$

En projetant sur la partie électronique  $\boldsymbol{\Sigma} \rightarrow \boldsymbol{\sigma}$  on obtient :

$$\frac{e\hbar^4}{32m^4c^6} \nabla \cdot \frac{\partial^2\mathbf{E}}{\partial t^2} + \frac{e\hbar^3}{32m^4c^6} \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( 2\frac{\partial^2\mathbf{E}}{\partial t^2} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) - i\hbar\frac{\partial^3\mathbf{B}}{\partial t^3} \right). \quad (1.93)$$

Le terme contenant l'opérateur de spin, en comparaison avec les résultats à l'ordre deux semblent représenter un couplage de type **spin-orbite avec la dérivée temporelle seconde du champ électrique**. On retrouve également un couplage de type Zeeman avec la **dérivée temporelle d'ordre trois du champ magnétique**.

Le premier terme n'est pas aisé à interpréter mais on peut risquer l'interprétation suivante : en écrivant  $\partial_{t^2}^2\mathbf{E} = c^2\Delta\mathbf{E}$  on transforme :

$$\frac{e\hbar^4}{32m^4c^6} \nabla \cdot \frac{\partial^2\mathbf{E}}{\partial t^2} \approx \frac{e\hbar^4}{32m^4c^6} \nabla \cdot (c^2\Delta\mathbf{E}) \approx \frac{e\hbar^4}{32m^4c^4} \frac{\partial^4\Phi}{\partial r^4}. \quad (1.94)$$

Le terme (1.94) pourrait correspondre à la correction au quatrième ordre de l'énergie potentielle du au Zitterbewegung (1.95) mais les coefficients numériques ne correspondent pas. Nous suggérons de faire appel à un numéologue pour discuter de cet épineux problème :

$$\langle V(\mathbf{r} + \Delta\mathbf{r}) \rangle = e\Phi(\mathbf{r}) + \frac{e\hbar^2}{8m^2c^2} \frac{\partial^2\Phi}{\partial r^2} + \frac{1}{4!} \frac{e\hbar^4}{16m^4c^4} \frac{\partial^4\Phi}{\partial r^4} \neq e\Phi + \frac{e\hbar^2}{8m^2c^2} \Delta\Phi + \frac{e\hbar^4}{32m^4c^6} \frac{\partial^4\Phi}{\partial r^4}. \quad (1.95)$$

Enfin pour l'opérateur du cinquième ordre en  $(1/m)$ , le calcul est identique à celui de  $\{T, \ddot{T}\}$  à condition de remplacer  $\dot{T} = e\mathbf{c}\boldsymbol{\alpha} \cdot \partial_t\mathbf{E}$  par  $\ddot{T} = e\mathbf{c}\boldsymbol{\alpha} \cdot \partial_{ttt}\mathbf{E}$ . Après transformation du champ effectif et utilisation de l'équation de Maxwell-Faraday, la projection sur la partie électronique  $\boldsymbol{\Sigma} \rightarrow \boldsymbol{\sigma}$  et  $\beta \rightarrow 1$  donne :

$$\frac{e\hbar^5}{64m^5c^8} \left\{ (\mathbf{p} - e\mathbf{A}), \frac{\partial^3\mathbf{E}}{\partial t^3} \right\} - \frac{e\hbar^5}{64m^5c^8} \boldsymbol{\sigma} \cdot \frac{\partial^4\mathbf{B}}{\partial t^4}. \quad (1.96)$$

Comme pour l'opérateur du troisième ordre, le premier terme de (1.96) est difficile à comprendre physiquement. En revanche la partie de spin fait apparaître un couplage Zeeman avec la **dérivée temporelle d'ordre quatre du champ magnétique**.

### Etude de l'ensemble des termes directs

En combinant l'ensemble des termes direct du troisième ordre en  $(1/m)$  (1.87) et ceux des formules (1.93) et (1.96) on donne l'expression du hamiltonien  ${}^\sigma H'^d$  qui comprend l'ensemble des termes directs au cinquième ordre en  $(1/m)$  :

$$\begin{aligned} {}^\sigma H'^d &= -\frac{e\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \mathbf{B} + \frac{1}{4mc^2} \left( 2\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) - i\hbar\frac{\partial\mathbf{B}}{\partial t} \right) - \frac{\hbar^2}{8m^2c^4} \frac{\partial^2\mathbf{B}}{\partial t^2} \right. \\ &\quad \left. - \frac{\hbar^2}{16m^3c^6} \left( 2\frac{\partial^2\mathbf{E}}{\partial t^2} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) - i\hbar\frac{\partial^3\mathbf{B}}{\partial t^3} \right) + \frac{\hbar^4}{32m^4c^8} \frac{\partial^4\mathbf{B}}{\partial t^4} \right) + \vartheta(m^{-6}). \end{aligned} \quad (1.97)$$

Sous cette forme la systématique pressentie dans la question **Q2** prend une forme beaucoup plus pertinente. Le champ magnétique est présent à chaque ordre du développement et le champ électrique est présent aux ordres pairs. Si on regroupe les termes magnétiques de (1.97) on voit qu'ils obéissent à une systématique intéressante. En introduisant la **longueur d'onde Compton**  $\lambda_c = \frac{h}{mc}$  et la pulsation Compton associée  $\omega_c = \frac{2\pi c}{\lambda_c}$  on transforme la contribution des termes magnétiques :

$$\begin{aligned}
\sigma H'_{magnétique} &= -\frac{e\hbar}{2m}\boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \mathbf{B} - \frac{i\hbar}{4mc^2} \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} - \frac{\hbar^2}{8m^2c^4} \frac{\partial^2 \mathbf{B}}{\partial t^2} + \frac{i\hbar^3}{8m^2c^4} \frac{\partial^3 \mathbf{B}}{\partial t^3} + \frac{\hbar^4}{32m^4c^8} \frac{\partial^4 \mathbf{B}}{\partial t^4} \right) + \vartheta(m^{-6}) \\
&= -\frac{e\hbar}{2m}\boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \mathbf{B} - \frac{i}{4\omega_c} \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} - \frac{1}{8\omega_c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{B}}{\partial t^2} + \frac{i}{16\omega_c^3} \frac{\partial^3 \mathbf{B}}{\partial t^3} + \frac{1}{32\omega_c^4} \frac{\partial^4 \mathbf{B}}{\partial t^4} \right) + \vartheta(m^{-6}) \\
&= -\frac{e\hbar}{2m}\boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \mathbf{B} + \frac{1}{2} \sum_{n=1,2,3,4} \left( \frac{1}{2i\omega_c} \right)^n \frac{\partial^n \mathbf{B}}{\partial t^n} \right) + \vartheta(m^{-6}). \tag{1.98}
\end{aligned}$$

On peut remarquer que les deux termes électriques de (1.97) suivent une logique similaire :

$$\begin{aligned}
\sigma H'_{électrique} &= -\frac{e\hbar}{2m}\boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \frac{1}{4mc^2} (2\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A})) - \frac{\hbar^2}{16m^3c^6} \left( 2 \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \right) \right) + \vartheta(m^{-6}) \\
&= -\frac{e\hbar}{2m}\boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \frac{1}{2mc^2} \mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) + \frac{1}{2mc^2} \frac{-1}{4\omega_c^2} \left( \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \right) \right) + \vartheta(m^{-6}) \\
&= -\frac{e\hbar}{2m}\boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \frac{1}{2mc^2} \sum_{n=0,2} \left( \frac{i}{2\omega_c} \right)^n \frac{\partial^n \mathbf{E}}{\partial t^n} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \right) + \vartheta(m^{-6}). \tag{1.99}
\end{aligned}$$

Il est tentant de supposer que les formules (1.98) et (1.99) sont valides à tous les ordres en  $1/m$ . On suppose alors que le couplage direct entre les **degrés de liberté de spin et un champ électromagnétique dépendant du temps** peut s'exprimer de manière générale par la formule suivante :

$$\sigma H'^d = -\frac{e\hbar}{2m}\boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \mathbf{B} + \frac{1}{2} \sum_{n=1,2,\dots} \left( \frac{1}{2i\omega_c} \right)^n \frac{\partial^n \mathbf{B}}{\partial t^n} + \frac{1}{2mc^2} \sum_{n=0,2,\dots} \left( \frac{i}{2\omega_c} \right)^n \frac{\partial^n \mathbf{E}}{\partial t^n} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \right). \tag{1.100}$$

L'effet Zeeman et l'interaction spin-orbite représenteraient les deux premiers termes d'une expansion plus complexe. La formule (1.100) est étudiée plus en détail dans la section (1.4.3).

### 1.4.2 Couplage indirect

Dans cette partie, on ne développe pas les expressions complètes des éléments de  $H'^{(4)}$  et  $H'^{(5)}$ . On se contente de présenter la contribution des opérateurs vectoriels en omettant les coefficients numériques.

#### Eléments du quatrième ordre

Le hamiltonien du quatrième ordre (1.88) contient deux termes indirects représentés par les opérateurs  $[\hat{T}, T^3]$  et  $T[T, \hat{T}]T$ . En développant ces expressions on voit que l'on peut les écrire comme des produits des opérateurs  $T\hat{T}$  ou  $\hat{T}T$  par l'opérateur  $T^2$  à droite ou à gauche. Avec les expressions de  $T\hat{T} = ec^2((\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \cdot \mathbf{E} + i\boldsymbol{\Sigma} \cdot ((\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \wedge \mathbf{E}))$  et celle de  $T^2 = c^2(\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2 - e\hbar c^2 \boldsymbol{\Sigma} \cdot \mathbf{B}$  la projection sur la partie électronique  $\boldsymbol{\Sigma} \rightarrow \boldsymbol{\sigma}$  donnerait des expressions de couplage indirect du type :

$$\left\{ \begin{array}{l} (\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}))) (\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B}) ; (\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B}) (\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}))) \\ (\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}))) (\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2 ; (\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2 (\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}))) \\ (\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B}) ((\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \cdot \mathbf{E}) ; ((\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \cdot \mathbf{E}) (\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B}) \end{array} \right. . \tag{1.101}$$

### Eléments du cinquième ordre

Au cinquième ordre en  $(1/m)$ , l'équation (1.89) donne les termes de couplage indirect suivants que l'on sépare en quatre groupes :

$$T^6 ; \left( \{T^3, \ddot{T}\} ; T\{T, \ddot{T}\}T \right) ; \{T^2, \dot{T}^2\} ; \left( T\dot{T}\dot{T}\dot{T} ; \dot{T}T\dot{T}T ; \dot{T}T^2\dot{T} ; T\dot{T}^2T \right).$$

En effet, les deux termes  $\{T^3, \ddot{T}\}$  et  $T\{T, \ddot{T}\}T$  sont en fait des produits des opérateurs  $T\ddot{T}$  et  $\ddot{T}T$  par l'opérateur  $T^2$  à droite ou à gauche. Avec l'expression de  $T\ddot{T} = ec^2((\mathbf{p}-e\mathbf{A}) \cdot \partial_t \mathbf{E} + i\boldsymbol{\Sigma} \cdot ((\mathbf{p}-e\mathbf{A}) \wedge \partial_t \mathbf{E}))$  ces deux termes contribuent aux couplages :

$$\left\{ \begin{array}{l} (\boldsymbol{\sigma} \cdot (\partial_t \mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}))) (\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B}) ; (\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B}) (\boldsymbol{\sigma} \cdot (\partial_t \mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}))) \\ (\boldsymbol{\sigma} \cdot (\partial_t \mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}))) (\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2 ; (\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2 (\boldsymbol{\sigma} \cdot (\partial_t \mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}))) \\ (\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B}) ((\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \cdot \partial_t \mathbf{E}) , ((\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \cdot \partial_t \mathbf{E}) (\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B}) \end{array} \right. . \quad (1.102)$$

De la même manière, on remarque que les éléments  $T\dot{T}\dot{T}\dot{T}$ ,  $\dot{T}T\dot{T}T$ ,  $\dot{T}T^2\dot{T}$  et  $T\dot{T}^2T$  sont des produits de  $\dot{T}T$  (ou  $T\dot{T}$ ) avec  $T\dot{T}$  (ou  $\dot{T}T$ ) et conduisent à des expressions du type :

$$(\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}))) (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) ; (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) (\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}))) . \quad (1.103)$$

Le terme  $\{T^2, \dot{T}^2\}$  avec  $\dot{T}^2 = (ec\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{E})(ec\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{E}) = e^2 c^2 \mathbf{E}^2$  donne un terme de couplage non-linéaire par rapport au champ électrique  $E$  :

$$(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B}) \mathbf{E}^2 ; \mathbf{E}^2 (\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B}) . \quad (1.104)$$

Enfin, on constate que l'opérateur en  $T^6$  est en accord avec le développement de l'expression de l'énergie relativiste en présence d'un champ magnétique. En développant au cinquième ordre on obtient bien :

$$H'_T = \beta mc^2 \left( 1 + \frac{T^2}{m^2 c^4} \right)^{1/2} = mc^2 \beta + \frac{\beta T^2}{2mc^2} - \frac{\beta T^4}{8m^3 c^6} + \frac{\beta T^6}{16m^5 c^{10}} + \vartheta(m^{-6}) . \quad (1.105)$$

nous avons déjà montré que l'opérateur  $T^4 = T^2 \cdot T^2$  au troisième ordre conduisait aux opérateurs :

$$(\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2 (\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B}) ; (\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B}) (\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2 . \quad (1.106)$$

Au cinquième ordre en écrivant  $T^6 = T^2 \cdot T^2 \cdot T^2$  on obtient les termes de couplage indirect suivant :

$$\left\{ \begin{array}{l} (\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B}) \mathbf{B}^2 \\ (\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B}) (\mathbf{p} - e\mathbf{A})^4 ; (\mathbf{p} - e\mathbf{A})^4 (\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B}) \\ (\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2 (\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B}) (\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2 ; (\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B}) (\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2 (\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B}) \end{array} \right. . \quad (1.107)$$

#### Remarques :

- Le cas d'un électron en interaction avec un champ magnétique statique homogène est un cas particulier où l'équation de Dirac peut être résolue de manière exacte (niveaux relativistes de Landau). Dans la référence [4] un champ magnétique  $\mathbf{B}$  orienté selon l'axe  $z$ , d'amplitude  $B$  et dérivant d'un potentiel vecteur  $\mathbf{A} = \mathbf{B} \wedge \mathbf{r}$  conduit à une expression exacte de l'énergie  $E^2 = m^2 c^4 + c^2 p_z^2 + e\hbar c^2 B(2n + 1 - s)$  où  $n$  est un entier,  $s = \pm 1$  sont les valeurs propres de  $\sigma_z$  et  $p_z$  est un nombre réel correspondant aux valeurs propres de l'opérateur  $\hat{p}_z$ . En développant  $E$  au cinquième ordre on retrouve alors des termes en concordance parfaite avec les termes de couplage indirect donnés par (1.106) et (1.107).

- En mécanique quantique non relativiste les énergies des niveaux de Landau sont proportionnelles au champ magnétique  $B$  tandis que dans le cas relativiste les énergies sont proportionnelles à la racine carrée du champ magnétique  $\sqrt{B}$ . C'est cette différence qui a permis de montrer que le graphène peut être modélisé par un hamiltonien de Dirac à deux dimensions pour des électrons de masse nulle [31].
- Mise à part le terme en  $T^6$  provenant du développement  $H'_T$  il était difficile de prévoir l'existence des opérateurs transformés obtenus dans les formules (1.88) et (1.89). On peut cependant remarquer que l'ensemble des termes dépendants du spin obtenus par la TFW semblent provenir de deux axes principaux : i) ceux obtenus par expansion de l'expression de l'énergie cinétique relativiste (1.105) ; ii) ceux provenant des termes directs dépendant du temps (1.92). Tous les autres proviennent d'un "croisement" des éléments appartenant aux deux axes principaux. Pour résumer, on peut écrire de façon symbolique le hamiltonien au cinquième ordre en  $1/m$  impliquant le spin sous la forme :

$$\sigma H'_{e,\text{total}} = \underbrace{(1.87)^d + (1.106)^i}_{\text{termes de } m^{-1} \text{ à } m^{-3}} + \underbrace{(1.93)^d + (1.101)^i}_{\text{termes } m^{-4}} + \underbrace{(1.96)^d + (1.102)^i + (1.103)^i + (1.104)^i + (1.106)^i}_{\text{termes } m^{-5}},$$

où les indices  $d(i)$  représentent les termes de couplage direct(indirect). On peut résumer la situation sous la forme d'un tableau :

	Termes directs			Termes indirects
Ordre en $(1/m)$	Origine	Champ magnétique	Champ électrique	Origine
1	$\{T, \dot{T}\}$	$\mathbf{B}$		
2	$[T, \dot{T}]$	$\partial_t \mathbf{B}$	$\mathbf{E} \wedge \mathbf{p}$	
3	$\{T, \ddot{T}\}$	$\partial_{tt} \mathbf{B}$		$T^4$
4	$[T, \ddot{T}]$	$\partial_{ttt} \mathbf{B}$	$\partial_{tt} \mathbf{E} \wedge \mathbf{p}$	$T\dot{T} * T^2$
5	$\{T, \ddot{T}\}$	$\partial_{tttt} \mathbf{B}$		$T^6, T\ddot{T} * T^2,$ $T\dot{T} * T\dot{T}, \dot{T}^2 * T^2$

- On pourra remarquer que d'autres termes de couplage direct se "cachent" parmi les termes indirects. Dans les formules (1.101) et (1.102) on trouve respectivement les éléments  $(\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}))) (\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B})$  et  $(\boldsymbol{\sigma} \cdot (\partial_t \mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}))) (\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B})$ . Par application de la formule de Pauli (1.2) :  $(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{X})(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{Y}) = \mathbf{X} \cdot \mathbf{Y} + i\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{X} \wedge \mathbf{Y})$  ces deux termes donnent des couplages du type :

$$\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \wedge \mathbf{B}), \quad \boldsymbol{\sigma} \cdot (\partial_t \mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \wedge \mathbf{B}).$$

### 1.4.3 Importance des termes directs en spectroscopie ultra-rapide

On étudie l'importance des corrections relativistes de la formule (1.100) représentant les termes de couplage direct :

$$\sigma H'^d = -\frac{e\hbar}{2m}\boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \mathbf{B} + \frac{1}{2} \sum_{n=1,2,\dots} \left( \frac{1}{2i\omega_c} \right)^n \frac{\partial^n \bar{\mathbf{B}}}{\partial t^n} + \frac{1}{2mc^2} \sum_{n=0,2,\dots} \left( \frac{i}{2\omega_c} \right)^n \frac{\partial^n \mathbf{E}}{\partial t^n} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \right).$$

Le spin électronique ressent le champ magnétique effectif :

$$\mathbf{B}_{\text{eff}} = \mathbf{B} + \frac{1}{2} \sum_{n=1,2,\dots} \left( \frac{1}{2i\omega_c} \right)^n \frac{\partial^n \mathbf{B}}{\partial t^n} + \frac{1}{2mc^2} \sum_{n=0,2,\dots} \left( \frac{i}{2\omega_c} \right)^n \frac{\partial^n \mathbf{E}}{\partial t^n} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}). \quad (1.108)$$

L'effet Zeeman et l'interaction spin-orbite (terme pour  $n = 0$ ) existent pour des champs magnétiques et électriques statiques mais en présence d'un champ électromagnétique dépendant du temps s'ajoutent des termes nouveaux dépendant explicitement de la variation temporelle de la source excitatrice. Cette particularité est intéressante pour les expériences de spectroscopies ultra-rapides impliquant des impulsions laser ultra-brèves et intenses.

Pour évaluer l'importance de ces corrections, on propose de raisonner avec des ordres de grandeur. On choisit de décrire le champ électromagnétique externe comme une onde plane caractérisée par le trièdre ( $\mathbf{k} = \frac{\omega}{c}\hat{\mathbf{k}}, \mathbf{E}, \mathbf{B}; \mathbf{E} \parallel \mathbf{A}$ ) et on choisit de décrire l'impulsion selon  $\|\mathbf{p}\| = mc$ . Ainsi :

$$\begin{cases} \partial_t \mapsto i\omega \\ \|\mathbf{E}\| = c\|\mathbf{B}\| \\ \|\mathbf{p}\| = mc \end{cases} .$$

Ces estimations permettent de réaliser les transformation suivantes :

$$\begin{aligned} \left( \frac{1}{2i\omega_c} \right)^n \frac{\partial^n \mathbf{B}}{\partial t^n} &\longrightarrow \left( \frac{\omega}{2\omega_c} \right)^n \mathbf{B} \quad n = 1, 2, \dots \\ \frac{1}{mc^2} \left( \frac{i}{2\omega_c} \right)^n \frac{\partial^n \mathbf{E}}{\partial t^n} \wedge \mathbf{p} &\longrightarrow \left( -\frac{\omega}{2\omega_c} \right)^n \mathbf{B} \quad n = 0, 2, \dots \end{aligned}$$

On peut comparer les termes correctifs directement au champ magnétique  $\mathbf{B}$  impliqué dans l'effet Zeeman. Il apparaît également qu'à l'ordre  $n$ , les contributions électrique et magnétique ont la même amplitude :

$$A_n \equiv \left( \frac{\omega}{2\omega_c} \right)^n. \quad (1.109)$$

#### Remarques

- Sous ces hypothèses, d'après la formule (1.108), le terme d'interaction spin-orbite ( $n = 0$ ) vaut la moitié du terme d'interaction Zeeman.
- Concernant les termes pour  $n \geq 1$ , l'équation (1.109) met en évidence la compétition entre deux échelles de temps : celle liée à la pulsation du champ électromagnétique excitateur  $\omega$  et celle imposée par la pulsation Compton  $\omega_c$ .

Sur la Fig 1.3, on peut voir l'amplitude en échelle logarithmique de la  $n^{ieme}$  correction relativiste en fonction de la pulsation du champ électromagnétique excitateur.

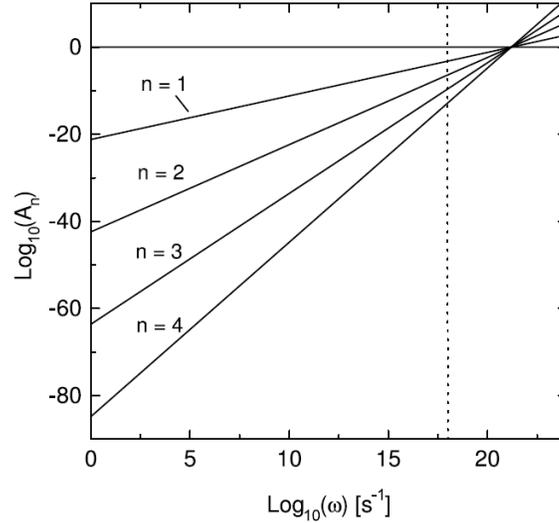


FIG. 1.3 – Amplitude des corrections en fonction de la pulsation du champ externe ; la droite verticale en pointillés indique le régime attoseconde.

D'après la formule (1.109), l'ordonnée  $\log_{10}(A_{n=0}) = 0$  correspond à l'interaction spin-orbite qui ne dépend pas de la dérivée temporelle  $\partial_t$ . A amplitude de champ fixée, sa valeur reste constante quelque soit la pulsation du champ externe. En revanche, les amplitudes des corrections pour  $n \geq 1$ , deviennent de plus en plus importantes à mesure que la pulsation du champ augmente, mais tout en restant toujours inférieures à la contribution du terme de spin-orbite. On peut donc affirmer que vers les régimes ultra-rapides, apparaissent des couplages nouveaux impliquant le spin. La ligne en pointillés représente le domaine du régime atto-seconde. Les amplitudes des corrections deviennent égales précisément pour  $\omega = 2\omega_c$ .

#### Remarques :

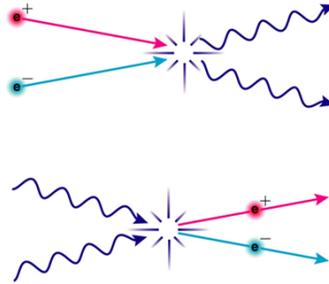
- Il faut préciser que d'après l'hypothèse d'étude  $\|\mathbf{p}\| = mc$ , même vers des régimes ultra-rapides et des amplitudes de champ élevées l'effet Zeeman associé à  $\mathbf{B}$  sera toujours prépondérant devant l'interaction spin-orbite et les corrections relativistes seront toujours inférieures à ces deux termes. En revanche, pour des régimes ultra-relativistes  $\|\mathbf{p}\| > 2mc$ , les termes électriques impliquant l'impulsion  $\mathbf{p}$  peuvent modifier cette hiérarchie.
- Cette étude est réalisée avec un électron et un unique champ électromagnétique externe dépendant du temps. Si on considère la matière et un ensemble de  $N$  particules, il faut ajouter les champs électrique et magnétique statiques du matériau ainsi que les champs de polarisation induits par le champ externe.

### 1.4.4 Domaine de validité de la TFW

Il nous reste à discuter des limites de l'utilisation de la transformation de FW. Imaginons la possibilité d'exciter un électron à l'aide d'un champ externe à deux fois la pulsation Compton ( $\omega = 2\omega_c \approx 10^{21} \text{ s}^{-1}$ ). Dans ce cas les corrections relativistes ont toutes la même amplitude (cf Fig 1.3) et le hamiltonien  ${}^\sigma H'^d$  diverge :

$$\begin{aligned} {}^\sigma H'^d(2\omega_c) &= -\frac{e\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B} \left( 1 + \frac{1}{2} \sum_{n=1,2,\dots}^{\infty} \left( \frac{2\omega_c}{2\omega_c} \right)^n + \frac{1}{2} \sum_{n=0,2,\dots}^{\infty} \left( -\frac{2\omega_c}{2\omega_c} \right)^n \right) \\ &= -\frac{e\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B} \left( 1 + \frac{1}{2} \sum_{n=1,2,\dots}^{\infty} 1 + \frac{1}{2} \sum_{n=0,2,\dots}^{\infty} (-1)^n \right) \\ &= -\frac{e\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B} \left( 1 + \frac{1}{2} (1 + 1 + \dots) + \frac{1}{2} (1 + 1 + \dots) \right) \longrightarrow +\infty . \end{aligned}$$

Le hamiltonien de FW diverge car il n'est plus en mesure de décrire le système. En effet, la transformation de FW brise la symétrie de charge entre l'électron et le positron et sépare les hamiltoniens respectifs. Le hamiltonien transformé de Foldy-Wouthuysen décrit le comportement de l'électron dans le régime des basses énergies où le positron n'est pas matérialisé. En utilisant des champs électromagnétiques ultra-rapides, l'énergie du système augmente par l'apport de photons d'énergie  $\hbar\omega$ . Au delà d'une énergie seuil de  $2\hbar\omega_c = 2mc^2$ , le phénomène de création de paires électron-positron peut se produire et la présence du positron devient possible.



L'hamiltonien électronique de FW n'est plus valide car il ne peut décrire le système en terme d'un unique électron. Précisons également que dans cette étude le champ électromagnétique n'est pas quantifié et que la création et l'annihilation de photons ne sont pas permises. On peut aussi poétiquement et naïvement voir cette divergence comme une transition de phase dans un espace de description mathématique.

## 1.5 Equations du mouvement

« Oaohwhaaowahaoa.. »

Gus en s'étirant

A l'aide des résultats de la section (1.4.3) on établit quel est le hamiltonien dont il faudrait tenir compte pour étudier les phénomènes de désaimantation ultra-rapide exposés en sections (4.1.4) et (6.1.3). On établit les équations du mouvement pour les observables de position, d'impulsion et de spin à partir du

théorème d'Erhenfest. L'équation du mouvement relative à la position permet de définir l'impulsion généralisée. Les évolutions au cours du temps de l'impulsion et du spin sont associées respectivement au principe fondamental de la dynamique et au théorème du moment cinétique utilisés en mécanique classique.

### 1.5.1 Hamiltonien dans le régime femto-seconde

On cherche à obtenir des informations sur la dynamique électronique dans le contexte de la désaimantation ultra-rapide cohérente de films ferromagnétiques, induite par une impulsion laser de 48 fs. Dans les sections (4.1.4) et (6.1.3) on explique que le hamiltonien de FW au deuxième ordre en  $1/m$  est proposé pour être à l'origine d'un tel phénomène [8] :

$$H^{FW} = mc^2 + e\Phi + \frac{(\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2}{2m} - \frac{e\hbar}{2m}\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B} - \frac{e\hbar^2}{8m^2c^2}\boldsymbol{\nabla} \cdot \mathbf{E} - \underbrace{\frac{e\hbar}{4m^2c^2}\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}))}_{n=0} - \underbrace{\frac{ie\hbar}{8m^2c^2}\boldsymbol{\sigma} \cdot (\boldsymbol{\nabla} \wedge \mathbf{E})}_{n=1} + \vartheta (m^{-3}). \quad (1.110)$$

Il est également proposé que le(s) couplage(s) entre le spin et le champ électromagnétique puisse(nt) être à l'origine de la désaimantation observée. C'est pour comprendre l'importance de l'interaction entre un champ électromagnétique dépendant du temps et les degrés de liberté de spin que nous avons réalisé l'étude de ce premier chapitre. Nous avons mis en évidence que dans des régimes dépendant du temps, l'interaction spin-champ donnait lieu à des couplages directs et indirects et que les amplitudes de ces corrections dépendaient essentiellement de la pulsation du champ externe.

Les termes de (1.110) impliquant le spin ne sont que des termes directs. Il s'agit du terme d'interaction Zeeman et des termes correspondant à  $n = 0$  et  $n = 1$  de la formule (1.100). D'après les résultats de la section (1.4.3), on peut dire que l'interaction Zeeman et l'interaction spin-orbite sont prépondérants dans le régime femto-seconde et que le terme  $n = 1$  peut être négligé (cf Fig1.3). On travaillera avec le hamiltonien suivant dans la limite non relativiste :

$$H = e\Phi + \frac{(\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2}{2m} - \frac{e\hbar}{2m}\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B} - \frac{e\hbar^2}{8m^2c^2}\boldsymbol{\nabla} \cdot \mathbf{E} - \frac{e\hbar}{4m^2c^2}\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A})),$$

que l'on décompose en deux parties  $H = H^{(1)} + H^{(2)}$  :

$$\begin{cases} H^{(1)} = e\Phi + \frac{\mathbf{p}^2}{2m} - \frac{e}{2m}(\mathbf{p} \cdot \mathbf{A} + \mathbf{A} \cdot \mathbf{p}) + \frac{e^2}{2m}\mathbf{A}^2 - \frac{e\hbar}{2m}\boldsymbol{\sigma} \cdot (\boldsymbol{\nabla} \wedge \mathbf{A}) \\ H^{(2)} = -\frac{e\hbar^2}{8m^2c^2}\boldsymbol{\nabla} \cdot \mathbf{E} - \frac{e\hbar}{4m^2c^2}\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A})) \end{cases}.$$

### 1.5.2 Observable position

On applique la relation d'Erhenfest à l'observable position  $\mathbf{r}$  et on utilise les règles de commutation de fonctions d'opérateurs canoniquement conjugués :

$$\frac{d\mathbf{r}}{dt} = \frac{i}{\hbar}[H, \mathbf{r}] + \frac{\partial \mathbf{r}}{\partial t} = \frac{i}{\hbar}[H(\mathbf{p}), \mathbf{r}] = \frac{i}{\hbar} \left( -i\hbar \frac{\partial H(\mathbf{p})}{\partial \mathbf{p}} \right), \quad (1.111)$$

où  $H(\mathbf{p})$  est la partie du hamiltonien dépendant de l'impulsion :

$$H(\mathbf{p}) = \frac{(\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2}{2m} - \frac{e\hbar}{4m^2c^2}\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A})). \quad (1.112)$$

En remplaçant (1.112) dans (1.111) on calcule :

$$\begin{aligned}\frac{d\mathbf{r}}{dt} &= \frac{\partial}{\partial \mathbf{p}} \left( \frac{(\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2}{2m} \right) + \frac{\partial}{\partial \mathbf{p}} \left( -\frac{e\hbar}{4m^2c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge \mathbf{p}) \right) \\ &= \frac{1}{m} (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) - \frac{e\hbar}{4m^2c^2} (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E}).\end{aligned}\quad (1.113)$$

Cette quantité permet de définir l'impulsion généralisée qui tient compte du spin et de l'interaction avec le champ électromagnétique au deuxième ordre en  $1/m$  :

$$\mathbf{P} = m \frac{d\mathbf{r}}{dt} = \mathbf{p} - e\mathbf{A} - \frac{e\hbar}{4mc^2} (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E}). \quad (1.114)$$

La forme (1.114), établie depuis longtemps, est utilisée pour décrire les phénomènes magnéto-optiques [66]. Nous en dirons quelques mots dans la section (4.2.2). Le terme contenant l'opérateur vectoriel  $\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E}$  est généralement interprété comme un potentiel vecteur jouant un rôle similaire à  $\mathbf{A}$  et non pas comme une impulsion proprement dite.

### 1.5.3 Observable impulsion

L'équation d'évolution de l'impulsion est plus difficile à obtenir car il faut tenir compte de l'impulsion généralisée et résoudre l'équation :

$$\frac{d\mathbf{P}}{dt} = \frac{i}{\hbar} [H, \mathbf{P}] + \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t}. \quad (1.115)$$

Etant donné que  $\mathbf{P}$  et  $H$  sont tous deux du second ordre en  $1/m$ , le commutateur  $[H, \mathbf{P}]$  donnera des termes indésirables du troisième ordre en  $1/m$ . On propose plutôt de réaliser le travail ordre par ordre.

#### Equation d'évolution au premier ordre en $1/m$

Dans ce cas il faut utiliser les quantités suivantes :

$$\begin{cases} H^{(1)} = e\Phi + \frac{\mathbf{p}^2}{2m} - \frac{e}{2m} (\mathbf{p} \cdot \mathbf{A} + \mathbf{A} \cdot \mathbf{p}) + \frac{e^2}{2m} \mathbf{A}^2 - \frac{e\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}) \\ \mathbf{P} = \mathbf{p} - e\mathbf{A} \end{cases},$$

et l'équation d'évolution pour l'impulsion généralisée au premier ordre en  $1/m$  s'écrit :

$$\begin{aligned}\frac{d(\mathbf{p} - e\mathbf{A})}{dt} &= \frac{i}{\hbar} [H, (\mathbf{p} - e\mathbf{A})] + \frac{\partial}{\partial t} (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \\ &= \frac{i}{\hbar} [H, \mathbf{p}] - \frac{ei}{\hbar} [H, \mathbf{A}] - e \underbrace{\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t}}_1.\end{aligned}\quad (1.116)$$

On détaille le calcul des deux commutateurs qui donne différentes contributions :

$$\begin{aligned}\frac{i}{\hbar} [H, \mathbf{p}] &= \frac{i}{\hbar} \left( \underbrace{[e\Phi, \mathbf{p}]}_2 - \underbrace{\frac{e}{2m} [(\mathbf{p} \cdot \mathbf{A} + \mathbf{A} \cdot \mathbf{p}), \mathbf{p}]}_3 + \underbrace{\frac{e^2}{2m} [A^2, \mathbf{p}]}_4 - \underbrace{\frac{e\hbar}{2m} [\boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}), \mathbf{p}]}_5 \right) \\ \frac{-ie}{\hbar} [H, \mathbf{A}] &= \frac{-ie}{\hbar} \left( \underbrace{\left[ \frac{\mathbf{p}^2}{2m}, \mathbf{A} \right]}_6 - \underbrace{\frac{e}{2m} [(\mathbf{p} \cdot \mathbf{A} + \mathbf{A} \cdot \mathbf{p}), \mathbf{A}]}_7 - \underbrace{\frac{e\hbar}{2m} [\boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}), \mathbf{A}]}_8 \right).\end{aligned}$$

On s'intéresse tout d'abord aux termes (1) et (2) et on rappelle que l'on peut transformer le terme (2) selon :  $[e\Phi, \mathbf{p}] = -e\hbar[\Phi, \nabla] = e\hbar(\nabla\Phi)$ . Ainsi en sommant (1) et (2) on peut retrouver la force électrique :

$$\begin{aligned} (1) + (2) &= \frac{i}{\hbar}[e\Phi, \mathbf{p}] - e \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} \\ &= e \left( -\nabla\Phi - \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} \right) = e\mathbf{E}. \end{aligned} \quad (1.117)$$

On considère ensuite les quatres éléments (3), (4), (6) et (7). On se place en jauge de Coulomb ( $\nabla \cdot \mathbf{A} = 0$ ) et on utilise les propriétés de calcul suivantes introduites dans la section (1.1.2) :

$$\begin{cases} \mathbf{p} \cdot \mathbf{A} + \mathbf{A} \cdot \mathbf{p} = 2\mathbf{A} \cdot \mathbf{p} + \nabla \cdot \mathbf{A} = 2\mathbf{A} \cdot \mathbf{p} \\ [AB, C] = [A, C]B + A[B, C] \end{cases} \quad \begin{cases} [A_i, p_j] = -i\hbar[A_i, \nabla_j] = i\hbar(\nabla_j A_i) \\ [p_i, A_j] = -i\hbar[\nabla_i, A_j] = -i\hbar(\nabla_i A_j) \end{cases} .$$

Les quatre éléments sont transformés selon :

$$\begin{aligned} (3) &= -\frac{ei}{2m\hbar} 2[2\mathbf{A} \cdot \mathbf{p}, \mathbf{p}] = -\frac{ei}{m\hbar} \sum_{ij} [A_i p_i, p_j] e_j = -\frac{ei}{m\hbar} \sum_{ij} ([A_i, p_j] p_i + A_i [p_i, p_j]) = \frac{e}{m} \sum_{ij} (\nabla_j A_i) p_i \\ (4) &= \frac{ie^2}{2m\hbar} [\mathbf{A}^2, \mathbf{p}] = \frac{ie^2}{2m\hbar} \sum_{ij} ([A_i, p_j] A_i + A_i [A_i, p_j]) = -\frac{e^2}{m} \sum_{ij} (\nabla_j A_i) A_i \\ (6) &= -\frac{ie}{2m\hbar} [\mathbf{p}^2, \mathbf{A}] = -\frac{ie}{2m\hbar} \sum_{ij} ([p_i, A_j] p_i + p_i [p_i, A_j]) = -\frac{e}{m} \sum_{ij} (\nabla_i A_j) p_i \\ (7) &= \frac{ie^2}{2m\hbar} 2[\mathbf{A} \cdot \mathbf{p}, \mathbf{A}] = \frac{ie^2}{m\hbar} \sum_{ij} ([A_i, A_j] p_i + A_i [p_i, A_j]) = \frac{e^2}{m} \sum_{ij} A_i (\nabla_i A_j). \end{aligned}$$

On regroupe les termes de facteurs communs pour faire apparaître une **force de lorentz magnétique** :

$$(3) + (6) = -\frac{e}{m} \sum_{ij} p_i ((\nabla_i A_j) - (\nabla_j A_i)) = \frac{e}{m} \mathbf{p} \wedge (\nabla \wedge \mathbf{A}) = \frac{e}{m} \mathbf{p} \wedge \mathbf{B} \quad (1.118)$$

$$(4) + (7) = \frac{e^2}{m} \sum_{ij} A_i (\nabla_i A_j - (\nabla_j A_i)) = -\frac{e^2}{m} \mathbf{A} \wedge (\nabla \wedge \mathbf{A}) = -\frac{e^2}{m} \mathbf{A} \wedge \mathbf{B}. \quad (1.119)$$

Concernant les termes impliquants le spin, on réalise les mêmes transformations :

$$(5) = -\frac{ei}{2m} [\boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}), \mathbf{p}] = -\frac{ei}{2m} \sum_{ij} ([\sigma_i, p_j] B_i + \sigma_i [B_i, p_j]) = \frac{e\hbar}{2m} \sum_{ij} \sigma_i (\nabla_j B_i)$$

$$(8) = \frac{ie^2\hbar}{2m} [\boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}), \mathbf{A}] = \frac{ie^2\hbar}{2m} \sum_{ij} ([\sigma_i, A_j] B_i + \sigma_i [B_i, A_j]) = 0.$$

On remarque que tous les éléments sont nuls à l'exception du deuxième terme de (5) qui permet de retrouver une force dérivant du potentiel d'interaction magnétique :

$$(5) = -\frac{ei}{2m} [\boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}), \mathbf{p}] = \frac{ei}{2m} \sum_{ij} \sigma_i [B_i, p_j] = -\frac{e\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \mathbf{B}). \quad (1.120)$$

En sommant les contributions (1.117), (1.118), (1.119) et (1.120) l'équation du mouvement de l'impulsion généralisée (1.116) au premier ordre en  $1/m$  s'écrit :

$$\begin{aligned} \frac{d(\mathbf{p} - e\mathbf{A})}{dt} &= \frac{i}{\hbar} [H^{(1)}, (\mathbf{p} - e\mathbf{A})] + \frac{\partial}{\partial t} (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \\ &= e \left( \mathbf{E} + \frac{1}{m} (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \wedge \mathbf{B} \right) - \frac{e\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \mathbf{B}). \end{aligned} \quad (1.121)$$

On reconnaît la force de Lorentz classique à condition de substituer  $\mathbf{p} - e\mathbf{A}$  à  $\mathbf{p}$  ainsi que la force dérivant du potentiel magnétique impliquant le spin.

### Equation d'évolution au deuxième ordre en $1/m$

Au deuxième ordre en  $1/m$  il faut tenir compte de l'impulsion généralisée avec la correction du spin et l'équation d'Erhenfest décrite par (1.115) qui peut contenir des éléments du troisième ordre en  $1/m$ . Pour obtenir des termes exclusivement du deuxième ordre il faut écrire :

$$\frac{d\mathbf{P}}{dt} = \frac{i}{\hbar} \left[ H^{(2)}, (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \right] + \frac{i}{\hbar} \left[ H^{(1)}, -\frac{e\hbar}{4mc^2} (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E}) \right] + \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} + \vartheta (m^{-3}). \quad (1.122)$$

L'ensemble des termes du premier ordre ont déjà été calculés, il faut rajouter ceux du second ordre de contribution non nulle :

$$\begin{aligned} * \quad \frac{i}{\hbar} \left[ H^{(2)}, \mathbf{p} \right] &= \frac{i}{\hbar} \left( \underbrace{-\frac{e\hbar^2}{8m^2c^2} [\nabla \cdot \mathbf{E}, \mathbf{p}]}_9 - \underbrace{\frac{e\hbar}{4m^2c^2} [\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge \mathbf{p}), \mathbf{p}]}_{10} - \underbrace{\frac{e\hbar}{4m^2c^2} [\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (-e\mathbf{A})), \mathbf{p}]}_{11} \right) \\ * \quad \frac{-ie}{\hbar} \left[ H^{(2)}, \mathbf{A} \right] &= \frac{-ie}{\hbar} \left( \underbrace{-\frac{e\hbar}{4m^2c^2} [\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A})), \mathbf{A}]}_{12} \right) \\ * \quad \frac{i}{\hbar} \left[ H^{(1)}, -\frac{e\hbar}{4mc^2} (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E}) \right] + \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} &= \frac{i}{\hbar} \left[ \underbrace{\frac{\mathbf{p}^2}{2m}, -\frac{e\hbar}{4mc^2} (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E})}_{13} \right] + \frac{i}{\hbar} \left[ \underbrace{-\frac{e}{m} \mathbf{A} \cdot \mathbf{p}, -\frac{e\hbar}{4mc^2} (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E})}_{14} \right] - \underbrace{\frac{e\hbar}{4mc^2} \boldsymbol{\sigma} \wedge \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t}}_{15} \end{aligned}$$

On calcule les commutateurs en utilisant les mêmes règles que précédemment :

$$\begin{aligned} (10) &= -\frac{i}{\hbar} \frac{e\hbar}{4m^2c^2} [\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge \mathbf{p}), \mathbf{p}] = -\frac{ei}{4m^2c^2} [\mathbf{p} \cdot (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E}), \mathbf{p}] = -\frac{ei}{4m^2c^2} \sum_{ij} ([p_i, p_j] (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E})_i + p_i [( \boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E})_i, p_j]) \\ &= \frac{e\hbar}{4m^2c^2} \sum_{ij} p_i (\nabla_j (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E})_i) \\ (11) &= -\frac{i}{\hbar} \frac{e\hbar}{4m^2c^2} [\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (-e\mathbf{A})), \mathbf{p}] = \frac{ie^2}{4m^2c^2} [\mathbf{A} \cdot (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E}), \mathbf{p}] = \frac{ie^2}{4m^2c^2} \sum_{ij} ([A_i, p_j] (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E})_i + A_i [( \boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E})_i, p_j]) \\ &= -\frac{\hbar e^2}{4m^2c^2} \sum_{ij} ((\nabla_j A_i) (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E})_i + A_i (\nabla_j (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E})_i)) \\ (12) &= -\frac{-ei}{\hbar} \frac{e\hbar}{4m^2c^2} [\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge \mathbf{p}), \mathbf{A}] = -\frac{ie^2}{4m^2c^2} [\mathbf{p} \cdot (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E}), \mathbf{A}] = \frac{ie^2}{4m^2c^2} \sum_{ij} ([p_i, A_j] (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E})_i + p_i [( \boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E})_i, A_j]) \\ &= \frac{\hbar e^2}{4m^2c^2} \sum_{ij} (\nabla_i A_j) (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E})_i \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
(13) &= \frac{i}{\hbar} \left[ \frac{\mathbf{P}^2}{2m}, -\frac{e\hbar}{4mc^2} (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E}) \right] = -\frac{ei}{8m^2c^2} \sum_{ij} ([p_i, (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E})_j] p_i + p_i [p_i, (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E})_j]) \\
&= -\frac{e\hbar}{8m^2c^2} \sum_{ij} ((\nabla_i (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E})_j) p_i + p_i (\nabla_i (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E})_j)) \\
&= -\frac{e\hbar}{4m^2c^2} \sum_{ij} p_i (\nabla_i (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E})_j) \\
(14) &= \frac{i}{\hbar} \left[ -\frac{e}{m} \mathbf{A} \cdot \mathbf{p}, -\frac{e\hbar}{4mc^2} (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E}) \right] = \frac{ie^2}{4m^2c^2} \sum_{ij} ([A_i, (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E})_j] p_i + A_i [p_i, (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E})_j]) \\
&= \frac{\hbar e^2}{4m^2c^2} \sum_{ij} A_i (\nabla_i (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E})_j).
\end{aligned}$$

On peut calculer directement la contribution provenant du terme de Darwin :

$$(9) = -\frac{i}{\hbar} \frac{e\hbar^2}{8m^2c^2} [\nabla \cdot \mathbf{E}, \mathbf{p}] = -\frac{ei\hbar}{8m^2c^2} i\hbar \nabla (\nabla \cdot \mathbf{E}) = \frac{e\hbar^2}{8m^2c^2} \nabla \left( \nabla \cdot \left( \nabla \Phi + \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} \right) \right). \quad (1.123)$$

En regroupant les termes (10) et (13) on obtient le terme (1.124) :

$$\begin{aligned}
(10) + (13) &= \frac{e\hbar}{4m^2c^2} \sum_{ij} (p_i ((\nabla_j (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E})_i) - (\nabla_i (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E})_j))) \\
&= \frac{e\hbar}{4m^2c^2} \mathbf{p} \wedge (\nabla \wedge (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E})), \quad (1.124)
\end{aligned}$$

qui correspond à une force de Lorentz impliquant un champ magnétique dérivant du "potentiel vecteur" lié au spin. En regroupant ensuite les termes (11), (12) et (14) on découvre (1.125) :

$$\begin{aligned}
(11) + (12) + (14) &= \frac{e^2\hbar}{4m^2c^2} \sum_{ij} ((\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E})_i) ((\nabla_i A_j) - (\nabla_j A_i)) + A_i ((\nabla_i (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E})_j) - (\nabla_j (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E})_i)) \\
&= \frac{e^2\hbar}{4m^2c^2} ((\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E}) \wedge (\nabla \wedge \mathbf{A}) + \mathbf{A} \wedge (\nabla \wedge (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E}))) \\
&= \frac{e^2\hbar}{4m^2c^2} ((\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E}) \wedge \mathbf{B} + \mathbf{A} \wedge (\nabla \wedge (\boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E}))). \quad (1.125)
\end{aligned}$$

Le deuxième terme de (1.125) correspond à la force de Lorentz de la formule (1.124) mais impliquant le potentiel vecteur  $\mathbf{A}$ . Le premier terme décrit également une force de Lorentz magnétique mais associée à la correction de spin de l'impulsion. Ce dernier illustre que ce terme correctif peut s'interpréter comme un potentiel vecteur mais visiblement aussi comme une impulsion au sens cinétique. En regroupant les termes (1.123), (1.124) et (1.125) on peut compléter l'équation d'évolution (1.122) :

$$\begin{aligned}
\frac{d\mathbf{P}}{dt} &= \frac{i}{\hbar} [H, \mathbf{P}] + \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} \\
&= e \left( \mathbf{E} + \frac{\mathbf{P}}{m} \wedge \mathbf{B} \right) + \frac{1}{m} (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \wedge \left[ \nabla \wedge \left( \frac{e\hbar}{4mc^2} \boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E} \right) \right] - \frac{e\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \mathbf{B}) \\
&\quad + \frac{e\hbar^2}{8m^2c^2} \nabla (\nabla \cdot \mathbf{E}) - \frac{e\hbar}{4mc^2} \boldsymbol{\sigma} \wedge \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \vartheta (m^{-2}). \quad (1.126)
\end{aligned}$$

Remarque :

Les deux premiers termes de (1.126) semblent provenir d'un développement plus général impliquant l'impulsion généralisée du type :

$$e \left( \mathbf{E} + \frac{\mathbf{P}}{m} \wedge (\nabla \wedge \mathbf{P}) \right)$$

### 1.5.4 Observable de spin

L'équation d'évolution du spin est plus simple à obtenir car cet opérateur commute avec l'ensemble des autres opérateurs. Il y a juste les composantes du spin qui ne commutent pas entre elles et dont la relation de commutation est donnée par  $[\sigma_i, \sigma_j] = 2i\epsilon_{ijk}\sigma_k$ . La relation d'Erhenfest donne :

$$\frac{d\boldsymbol{\sigma}}{dt} = \frac{i}{\hbar} [H, \boldsymbol{\sigma}] + \frac{\partial \boldsymbol{\sigma}}{\partial t} = \frac{i}{\hbar} [H(\boldsymbol{\sigma}), \boldsymbol{\sigma}]. \quad (1.127)$$

Le hamiltonien  $H(\boldsymbol{\sigma})$  est représenté par la quantité suivante, où le spin ressent un champ magnétique effectif  $\mathbf{H}$  :

$$H(\boldsymbol{\sigma}) = -\frac{e\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \mathbf{B} + \frac{1}{2mc^2} (\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A})) \right) = -\frac{e\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{H}.$$

Le calcul de (1.127) devient :

$$\frac{d\boldsymbol{\sigma}}{dt} = \frac{i}{\hbar} \left[ -\frac{e\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{H}, \boldsymbol{\sigma} \right] = -\frac{ei}{2m} \sum_{ij} [\sigma_i H_i, \sigma_j] = \frac{e}{2m} \sum_{ijk} \epsilon_{ijk} H_i \sigma_k.$$

On obtient finalement l'équation (1.128) qui est l'équivalent du théorème du moment cinétique, où le spin précesse autour du champ effectif  $\mathbf{H}$  :

$$\frac{d\boldsymbol{\sigma}}{dt} = \frac{e}{m} \boldsymbol{\sigma} \wedge \left( \mathbf{B} + \frac{1}{2mc^2} (\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A})) \right). \quad (1.128)$$

## Chapitre 2

# Dynamique quantique relativiste du problème à deux particules

Le second chapitre traite de la limite non-relativiste du problème de deux électrons en interaction coulombienne en présence d'un champ électromagnétique externe dépendant du temps. Cette étude est nécessaire pour distinguer les interactions relatives aux champs "internes", produites par les sources localisées, des interactions "externes" induites par un champ électromagnétique variable dans le temps. Dans la section (2.1) on présente les fonctions de Lagrange et de Hamilton qui décrivent l'interaction retardée entre deux particules chargées. En mécanique quantique non-relativiste, le hamiltonien de Breit-Pauli, développé au second ordre en  $1/m$  permet une telle description. Il est généralement obtenu en l'absence de champ externe et on cherche à savoir si la présence d'un champ électromagnétique dépendant du temps apporte des modifications à l'interaction entre les deux particules. Pour répondre à cette question on réalise dans la section (2.2) une TFW dépendante du temps sur un système de deux électrons en interaction coulombienne en présence d'un champ électromagnétique variable dans le temps. La procédure permet de construire un hamiltonien d'interaction transformé; le développement est réalisé jusqu'au troisième ordre en  $1/m$ . Dans la section (2.3) on montre que le champ externe n'agit pas explicitement sur le hamiltonien d'interaction du second ordre en  $1/m$  et on retrouve le hamiltonien de Breit-Pauli. En revanche, on met en évidence en section (2.4), qu'à partir du troisième ordre en  $1/m$ , le champ externe agit comme un "troisième corps" et permet des interactions impliquant le spin des particules et l'interaction coulombienne. Pour finir, on pose en section (2.5) les bases nécessaires pour développer cette procédure jusqu'au quatrième et cinquième ordre en  $1/m$ .

### 2.1 Lagrangiens et hamiltoniens du système

« Plus le temps passe et  
moins il y a de futur... »

On présente les fonctions lagrangiennes et hamiltoniennes développées à l'ordre  $1/c^2$  qui permettent de corriger l'expression de l'énergie potentielle électromagnétique d'un système de deux particules chargées. On montre comment le lagrangien de Darwin permet de construire le hamiltonien de Breit à l'aide du formalisme de Dirac. En diagonalisant le hamiltonien de Breit (séparation de la matière et de l'anti-matière) on obtient le hamiltonien de Breit-Pauli, dont la partie du second ordre en  $1/m$  introduit de façon naturelle les interactions spin-orbite, spin-autre-orbite et les interactions entre les spins des deux particules. On s'intéresse en fin de section sur la manière la plus efficace de diagonaliser un système relativiste de deux électrons en interaction coulombienne en présence d'un champ externe dépendant du temps.

### 2.1.1 Lagrangien de Darwin

Soit un système de deux particules chargées de charge  $q_1$  et  $q_2$  en interaction coulombienne. L'énergie totale  $E = T + U$  du système est la somme des énergies cinétique et potentielle des deux particules. Elle s'écrit :

$$\begin{aligned} E &= \sum_{i=1}^2 T_i + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^2 \sum_{i \neq j}^2 U_{ij} \\ &= \sum_{i=1}^2 \frac{1}{2} m v_i^2 + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^2 \sum_{i \neq j}^2 \frac{q_i q_j}{4\pi\epsilon_0 r_{ij}} \\ &= \frac{1}{2} m v_1^2 + \frac{1}{2} m v_2^2 + \frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0 r_{12}}. \end{aligned}$$

Cette expression est vraie en mécanique classique mais pas en dynamique relativiste pour des vitesses proches de celle de la lumière. En relativité il faut prendre en compte l'énergie de masse et le fait que l'interaction électromagnétique ne soit pas instantanée. Les particules sont sensibles aux champs électromagnétiques produits par les autres, qui transmettent l'information à vitesse finie  $c$ . Pour une particule relativiste de charge  $q$  en présence d'un champ électromagnétique décrit par le couple  $(\mathbf{A}, \Phi)$ , la fonction de Lagrange du système définie par  $L = T - U$  s'écrit [20] :

$$L = -mc^2 \sqrt{1 - \frac{v^2}{c^2}} + q\mathbf{v} \cdot \mathbf{A} - q\Phi.$$

Pour des vitesses faibles devant la vitesse de la lumière  $v \ll c$ , cette fonction devient :

$$L = T - U \approx \frac{1}{2} m v^2 - (q\Phi - q\mathbf{v} \cdot \mathbf{A}).$$

L'énergie potentielle électromagnétique  $U$  prend à présent en compte le mouvement de la particule par rapport au champ et s'écrit :

$$U = q\Phi - q\mathbf{v} \cdot \mathbf{A}.$$

Pour un système de deux électrons en interaction, l'expression de l'énergie doit être modifiée en conséquence :

$$E = \sum_{i=1}^2 \frac{1}{2} m v_i^2 + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^2 \sum_{i \neq j}^2 (q_i \Phi_j - q_i \mathbf{v}_i \cdot \mathbf{A}_j).$$

Cette expression présentée de manière générale doit être précisée. La partie cinétique correspond au développement de l'énergie relativiste à l'ordre 0 en  $1/c$  et l'ordre de la partie potentielle n'est pas mentionné. En développant à l'ordre  $1/c^2$  la totalité de la fonction de Lagrange, on obtient le lagrangien de Darwin (1922) :

$$L = \sum_{i=1}^2 \left( \frac{1}{2} m v_i^2 + \frac{1}{8c^2} m v_i^4 \right) - \frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0 r_{12}} + \frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0 c^2} \left( \frac{\mathbf{v}_1 \cdot \mathbf{v}_2}{2r_{12}} + \frac{(\mathbf{v}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\mathbf{v}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{2r_{12}^3} \right) + \vartheta(1/c^4). \quad (2.1)$$

Cette dernière formule permet de corriger l'expression de l'énergie électromagnétique  $U$  entre deux particules chargées, en incorporant des termes "retardés" fonctions des vitesses  $\mathbf{v}_1$  et  $\mathbf{v}_2$ . En notant  $e^2 \equiv \frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0}$  on appellera dorénavant **lagrangien de Darwin** (bien qu'il s'agisse d'une fonction hamiltonienne) la partie électromagnétique de la formule (2.1) :

$$\begin{aligned} U \equiv L_D &= \frac{e^2}{r_{12}} - \frac{e^2}{2c^2} \left( \frac{\mathbf{v}_1 \cdot \mathbf{v}_2}{r_{12}} + \frac{(\mathbf{v}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\mathbf{v}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{r_{12}^3} \right) \\ &= e^2 \left( \frac{1}{r_{12}} - \frac{\mathbf{v}_1 \cdot \mathbf{v}_2}{2c^2 r_{12}} - \frac{(\mathbf{v}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\mathbf{v}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{2c^2 r_{12}^3} \right) + \vartheta(1/c^4). \end{aligned} \quad (2.2)$$

On présente deux méthodes qui permettent d'obtenir une telle expression. La première utilise l'expression des potentiels retardés et la seconde est développée à partir de la relativité restreinte. On pourra également trouver une démonstration de (2.2) dans l'ouvrage *Classical Electrodynamics* de J. D. Jackson [13].

### Développement à l'ordre deux en $(1/c)$ des potentiels de Liénard-Wiechert [20]

A partir des équations de Maxwell on peut écrire les équations de propagation des potentiels scalaire  $\Phi_L$  et vecteur  $\mathbf{A}_L$  dans la jauge de Lorentz ( $\nabla \cdot \mathbf{A} + \frac{1}{c} \frac{\partial \Phi}{\partial t} = 0$ ). Les solutions correspondent aux potentiels retardés de Liénard-Wiechert :

$$\begin{aligned} \Delta \Phi_L - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \Phi_L}{\partial t^2} &= -\frac{\rho}{\epsilon_0} & \Leftrightarrow & \Phi_L(\mathbf{x}, t) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \int d^3\mathbf{x}' \frac{\rho(\mathbf{x}', t - \frac{r}{c})}{r} \\ \Delta \mathbf{A}_L - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{A}_L}{\partial t^2} &= -\mu_0 \mathbf{j} & \Leftrightarrow & \mathbf{A}_L(\mathbf{x}, t) = \frac{\mu_0}{4\pi} \int d^3\mathbf{x}' \frac{\mathbf{j}(\mathbf{x}', t - \frac{r}{c})}{r}, \end{aligned}$$

avec  $r = \|\mathbf{x}' - \mathbf{x}\|$ . L'énergie électromagnétique d'une particule de charge  $q$  et de vitesse  $\mathbf{v}$  dans un champ électromagnétique décrit par  $(\Phi_L, \mathbf{A}_L)$  s'écrit :

$$U = q\Phi_L - q\mathbf{v} \cdot \mathbf{A}_L.$$

On réalise un développement de Taylor au deuxième ordre en  $1/c$  des potentiels en supposant qu'ils sont produits par une charge ponctuelle telle que  $\rho(\mathbf{x}', t) = q\delta(\mathbf{x}', t)$ . Ainsi,

$$\begin{aligned} \Phi_L(\mathbf{x}, t) &= \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \left( \int \frac{d^3\mathbf{x}'}{r} \rho(\mathbf{x}', t) - \frac{\partial}{\partial t} \frac{1}{c} \underbrace{\int \frac{d^3\mathbf{x}'}{r} r \rho(\mathbf{x}', t)}_q + \frac{\partial^2}{\partial t^2} \int \frac{d^3\mathbf{x}'}{r} \frac{r^2}{2c^2} \rho(\mathbf{x}', t) \right) + \vartheta(1/c^4) \\ &= \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \left( \int d^3\mathbf{x}' \frac{q\delta(\mathbf{x}', t)}{r} + \frac{1}{2c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \int d^3\mathbf{x}' r q\delta(\mathbf{x}', t) \right) + \vartheta(1/c^4) \\ &= \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \left( \frac{q}{r} + \frac{q}{2c^2} \frac{\partial^2 r}{\partial t^2} \right) + \vartheta(1/c^4). \end{aligned} \quad (2.3)$$

Le potentiel vecteur  $\mathbf{A}_L(\mathbf{x}, t)$  est déjà à l'ordre  $1/c^2$ . Il suffit d'écrire  $\mathbf{j}(\mathbf{x}', t - \frac{r}{c}) = \mathbf{j}(\mathbf{x}', t) = \rho(\mathbf{x}', t)\mathbf{v}$ ; on obtient :

$$\mathbf{A}_L(\mathbf{x}, t) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0 c^2} \int d^3\mathbf{x}' \frac{\rho(\mathbf{x}', t)\mathbf{v}}{r} = \frac{1}{4\pi\epsilon_0 c^2} \int d^3\mathbf{x}' \frac{q\delta(\mathbf{x}', t)\mathbf{v}}{r} = \frac{q\mathbf{v}}{4\pi\epsilon_0 c^2 r}. \quad (2.4)$$

On choisit de se placer dans la **jauge de Coulomb** ( $\nabla \cdot \mathbf{A} = 0$ ), dans laquelle  $\Phi_C = \frac{q}{4\pi\epsilon_0 r}$ , par le changement de jauge suivant :

$$\begin{cases} \Phi_C = \Phi_L - \frac{\partial f}{\partial t} \\ \mathbf{A}_C = \mathbf{A}_L + \nabla f \end{cases}. \quad (2.5)$$

L'expression (2.3) dans (2.5) permet d'obtenir directement l'expression de  $f$  :

$$\Phi_C(\mathbf{x}, t) = \frac{q}{4\pi\epsilon_0 r} = \Phi_L(\mathbf{x}, t) - \frac{\partial f}{\partial t} = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \left( \frac{q}{r} + \frac{q}{2c^2} \frac{\partial^2 r}{\partial t^2} \right) \Leftrightarrow f = \frac{q}{(4\pi\epsilon_0)2c^2} \frac{\partial r}{\partial t}.$$

On calcule ensuite  $\nabla f$  :

$$\begin{aligned}\nabla f &= \frac{q}{(4\pi\epsilon_0)2c^2} \nabla \left( \frac{\partial r}{\partial t} \right) = \frac{q}{(4\pi\epsilon_0)2c^2} \nabla \left( \frac{\partial r}{\partial t} \right) = \frac{q}{(4\pi\epsilon_0)2c^2} \frac{\partial (\nabla r)}{\partial t} \\ &= \frac{q}{(4\pi\epsilon_0)2c^2} \frac{\partial \hat{\mathbf{r}}}{\partial t} = \frac{q}{(4\pi\epsilon_0)2c^2} \frac{\partial}{\partial t} \left( \frac{\mathbf{r}}{r} \right) = \frac{q}{(4\pi\epsilon_0)2c^2} \left( \frac{1}{r} \frac{\partial \mathbf{r}}{\partial t} - \frac{\mathbf{r}}{r^2} \frac{\partial r}{\partial t} \right) \\ &= \frac{q}{(4\pi\epsilon_0)2c^2} \left( \frac{\dot{\mathbf{r}}}{r} - \frac{\mathbf{r}\dot{r}}{r^2} \right).\end{aligned}\quad (2.6)$$

Les dérivées  $\dot{\mathbf{r}}$  et  $\dot{r}$  s'obtiennent en différenciant  $\mathbf{r}^2 = r^2$  et en définissant  $\dot{\mathbf{r}} \equiv -\mathbf{v}$  :

$$d[\mathbf{r}^2] = d[r^2] \quad \Leftrightarrow \quad \begin{cases} r\dot{r} = \mathbf{r} \cdot \dot{\mathbf{r}} \\ \dot{\mathbf{r}} \equiv -\mathbf{v} \end{cases} \quad \Rightarrow \quad r\dot{r} = -\mathbf{r} \cdot \mathbf{v} \quad \Leftrightarrow \quad \begin{cases} \dot{\mathbf{r}} = -\mathbf{v} \\ \dot{r} = -\frac{\mathbf{r} \cdot \mathbf{v}}{r} \end{cases}.\quad (2.7)$$

Les expressions (2.7) sont réinjectées dans (2.6) :

$$\nabla f = \frac{q}{(4\pi\epsilon_0)2c^2} \left( -\frac{\mathbf{v}}{r} + \frac{\mathbf{r}(\mathbf{r} \cdot \mathbf{v})}{r^3} \right) = \frac{q}{(4\pi\epsilon_0)2c^2} \left( -\frac{\mathbf{v}}{r} + \frac{\hat{\mathbf{r}}(\hat{\mathbf{r}} \cdot \mathbf{v})}{r} \right).\quad (2.8)$$

Ainsi les équations (2.3) et (2.8) permettent d'obtenir les potentiels scalaire et vecteur en jauge de Coulomb avec la condition de jauge (2.5) :

$$\begin{aligned}\Phi_C &= \frac{q}{4\pi\epsilon_0 r} \\ \mathbf{A}_C &= \frac{q}{4\pi\epsilon_0} \left( \frac{\mathbf{v}}{2c^2 r} + \frac{\hat{\mathbf{r}}(\hat{\mathbf{r}} \cdot \mathbf{v})}{2c^2 r} \right).\end{aligned}$$

En supposant que  $\Phi_C$  et  $\mathbf{A}_C$  sont produits par une charge  $q_2$  de vitesse  $\mathbf{v}_2$  l'expression de l'énergie  $U$  en jauge de Coulomb permet bien de retrouver le lagrangien de Darwin :

$$\begin{aligned}U &= q_1 \Phi_C^{(2)} - q_1 \mathbf{v}_1 \cdot \mathbf{A}_C^{(2)} \\ &= \frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0 r_{12}} - q_1 \mathbf{v}_1 \cdot \frac{q_2}{4\pi\epsilon_0} \left( \frac{\mathbf{v}_2}{2c^2 r_{12}} + \frac{\hat{\mathbf{r}}_{12}(\hat{\mathbf{r}}_{12} \cdot \mathbf{v}_2)}{2c^2 r_{12}} \right) \\ &= \frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0 r_{12}} - \frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0 c^2} \left( \frac{\mathbf{v}_1 \cdot \mathbf{v}_2}{2r_{12}} + \frac{(\mathbf{v}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\mathbf{v}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{2r_{12}^3} \right) + \vartheta (1/c^4).\end{aligned}$$

### Développement à l'ordre deux en $(1/c)$ des quadrivecteurs [17]

Soient deux référentiels galiléens  $\mathbf{R}$  et  $\mathbf{R}'$  en mouvement relatif l'un par rapport à l'autre à la vitesse  $\mathbf{v} = v\mathbf{e}_x$ . Les composantes des quadrivecteurs  $\mathbf{4} - \mathbf{A} = (A_x, \Phi)$  et  $\mathbf{4} - \mathbf{A}' = (A'_x, \Phi')$  sont reliées par les transformations de Lorentz :

$$\begin{cases} A_x = \gamma(A'_x + v\frac{\Phi'}{c^2}) \\ \Phi = \gamma(\Phi' + vA'_x) \end{cases} \quad \begin{cases} A'_x = \gamma(A_x - v\frac{\Phi}{c^2}) \\ \Phi' = \gamma(\Phi - vA_x) \end{cases}.$$

On suppose que le potentiel vecteur  $A'_x$  est nul dans  $\mathbf{R}'$  ce qui conduit à l'expression suivante des potentiels dans le référentiel  $\mathbf{R}$  où on pose  $\mathbf{u} = \mathbf{v}$  :

$$\begin{cases} A_x = \gamma \frac{v\Phi'}{c^2} \\ \Phi = \gamma\Phi' \end{cases}.\quad (2.9)$$

On développe au deuxième ordre en  $1/c$  l'expression du potentiel  $\Phi$  donné par (2.10) [17] :

$$\Phi = \frac{q\gamma}{4\pi\epsilon_0 r} \left[ 1 + \left( \frac{\gamma \mathbf{u} \cdot \mathbf{r}}{cr} \right)^2 \right]^{-1/2} \quad (2.10)$$

$$\begin{aligned} &= \frac{q}{4\pi\epsilon_0 r} \left( 1 - \frac{u^2}{c^2} \right)^{-1/2} \left[ 1 + \left( 1 - \frac{u^2}{c^2} \right)^{-1} \left( \frac{\mathbf{u} \cdot \mathbf{r}}{cr} \right)^2 \right]^{-1/2} \\ &= \frac{q}{4\pi\epsilon_0 r} \left[ 1 + \frac{u^2}{2c^2} - \frac{1}{2} \left( \frac{\mathbf{u} \cdot \mathbf{r}}{cr} \right)^2 + \vartheta (c^{-4}) \right]. \end{aligned} \quad (2.11)$$

L'expression du potentiel vecteur  $\mathbf{A}$  au deuxième ordre en  $1/c$  s'écrit d'après (2.9) et (2.11) :

$$\mathbf{A} = \gamma \frac{\mathbf{u}\Phi'}{c^2} = \frac{\mathbf{u}\Phi}{c^2} = \frac{q}{4\pi\epsilon_0 r} \left[ \frac{\mathbf{u}}{c^2} + \vartheta (1/c^3) \right]. \quad (2.12)$$

Si on écrit l'énergie électromagnétique  $U$  pour deux charges  $q_1$  et  $q_2$  on obtient en remplaçant  $\mathbf{u}$  par  $\mathbf{v}_2$  :

$$\begin{aligned} U &= q_1 \Phi^{(2)} - q_1 \mathbf{v}_1 \cdot \mathbf{A}^{(2)} \\ &= \frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0 r} \left[ 1 + \frac{v_2^2}{2c^2} - \frac{1}{2} \left( \frac{\mathbf{v}_2 \cdot \mathbf{r}}{cr} \right)^2 \right] - q_1 \mathbf{v}_1 \cdot \frac{q_2 \mathbf{v}_2}{4\pi\epsilon_0 r c^2} + \vartheta (1/c^3). \end{aligned}$$

Cette dernière expression **n'est pas symétrique**. En effet, si on permute le rôle des particules 1 et 2 l'expression obtenue n'est pas identique. On réalise alors un changement de jauge en se plaçant dans la jauge de Coulomb :

$$\begin{cases} \Phi_C = \Phi_L - \frac{\partial \Lambda}{\partial t} \\ \mathbf{A}_C = \mathbf{A}_L + \nabla \Lambda \end{cases} \quad (2.13)$$

L'expression (2.11) permet de déterminer la fonction  $\Lambda$  :

$$\frac{\partial \Lambda}{\partial t} = \frac{q}{4\pi\epsilon_0} \left[ \frac{u^2}{2rc^2} - \frac{(\mathbf{u} \cdot \mathbf{r})^2}{2c^2 r^3} \right] \Leftrightarrow \Lambda = -\frac{q}{4\pi\epsilon_0} \frac{\mathbf{u} \cdot \mathbf{r}}{2c^2 r},$$

et d'en calculer le gradient :

$$\nabla \Lambda = -\frac{q}{(4\pi\epsilon_0)2c^2} \nabla \left( \frac{\mathbf{u} \cdot \mathbf{r}}{r} \right) = -\frac{q}{(4\pi\epsilon_0)2c^2} \nabla \left( \frac{\mathbf{u}}{r} - \frac{\mathbf{r}(\mathbf{u} \cdot \mathbf{r})}{r^3} \right). \quad (2.14)$$

On obtient alors les potentiels vecteur et scalaire en jauge de Coulomb à partir de (2.14), (2.12) et (2.13) :

$$\begin{aligned} \Phi_C^{(2)} &= \frac{q_2}{4\pi\epsilon_0 r} \\ \mathbf{A}_C^{(2)} &= \frac{q_2}{4\pi\epsilon_0} \left( \frac{\mathbf{u}}{2c^2 r} + \frac{\mathbf{r}(\mathbf{u} \cdot \mathbf{r})}{2c^2 r^3} \right). \end{aligned}$$

L'expression de l'énergie  $U$  est à présent symétrique et on retrouve bien l'expression du lagrangien de Darwin pour  $\mathbf{u} = \mathbf{v}_2$  :

$$\begin{aligned} U &= q_1 \Phi_C^{(2)} - q_1 \mathbf{v}_1 \cdot \mathbf{A}_C^{(2)} \\ &= \frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0 r_{12}} - \frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0 c^2} \left( \frac{\mathbf{v}_1 \cdot \mathbf{v}_2}{2r_{12}} + \frac{(\mathbf{v}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\mathbf{v}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{2r_{12}^3} \right) + \vartheta (c^{-4}). \end{aligned}$$

Remarques :

- On retiendra que le lagrangien de Darwin s'exprime en **jauge de Coulomb**. Il n'est **pas covariant**.
- On adoptera à présent la notation suivante :

$$L_D = \frac{e^2}{r_{12}} - \frac{e^2}{2c^2} \left( \frac{\mathbf{v}_1 \cdot \mathbf{v}_2}{r_{12}} + \frac{(\mathbf{v}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\mathbf{v}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{r_{12}^3} \right). \quad (2.15)$$

### 2.1.2 Hamiltonien de Breit

En dynamique quantique relativiste, le hamiltonien de deux particules en interaction coulombienne, de même masse et de charge  $q_1$  et  $q_2$ , s'écrit dans le formalisme de Dirac :

$$H = \sum_{i=1}^2 (c\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \mathbf{p}_i + mc^2\beta_i) + \frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0 r_{12}}. \quad (2.16)$$

La partie d'interaction électromagnétique peut également être complétée en s'inspirant du lagrangien semi-relativiste de Darwin. Pour cela on utilise les résultats de la section (1.1.2) dans laquelle on donne la définition de la vitesse moyenne dans le formalisme de Dirac :

$$\mathbf{v} \equiv c\boldsymbol{\alpha}.$$

En substituant  $\mathbf{v}_i \equiv c\boldsymbol{\alpha}_i$  dans l'expression (2.15), on peut compléter (2.16) :

$$H = \sum_{i=1}^2 (c\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \mathbf{p}_i + mc^2\beta_i) + \frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0 r_{12}} - \frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0} \left( \frac{\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \boldsymbol{\alpha}_2}{2r_{12}} + \frac{(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{2r_{12}^3} \right).$$

On appellera hamiltonien de Breit  $H_B$  [10] le hamiltonien suivant :

$$\begin{aligned} H_B &= \frac{e^2}{r_{12}} - e^2 \left( \frac{\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \boldsymbol{\alpha}_2}{2r_{12}} + \frac{(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{2r_{12}^3} \right) \\ &= V + G + J, \end{aligned} \quad (2.17)$$

que l'on sépare en trois parties :  $V$  est l'interaction coulombienne instantanée, les termes retardés sont appelés terme de Gaunt  $G$  et terme de Jauge  $J$ .

$$\begin{aligned} V &= \frac{e^2}{r_{12}} \\ G &= -e^2 \frac{\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \boldsymbol{\alpha}_2}{2r_{12}} \\ J &= -e^2 \frac{(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{2r_{12}^3}. \end{aligned}$$

Remarques :

Cette forme aussi n'est **pas covariante**. Une expression covariante de l'interaction entre deux électrons est donnée par l'**équation de Bethe-Salpeter** [6].

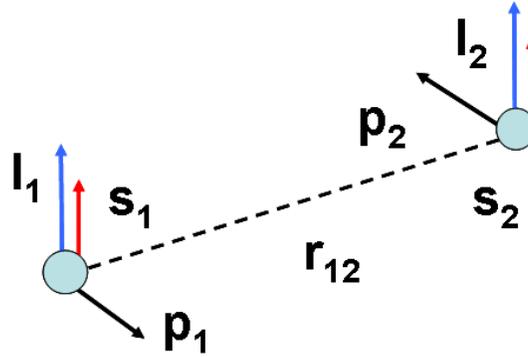
### 2.1.3 Hamiltonien de Breit-Pauli

Dans le premier chapitre nous avons montré que la diagonalisation du hamiltonien de Dirac conduisait au hamiltonien de Schrödinger dans la limite non relativiste. Si on diagonalise le hamiltonien de

Breit et que l'on réalise un développement au second ordre en  $1/m$  on obtient le hamiltonien de Breit-Pauli :

$$\begin{aligned}
H_{BP} = & \frac{e^2}{r_{12}} - \frac{\pi\hbar^2 e^2}{m^2 c^2} \delta(r_{12}) - \frac{e^2}{2m^2 c^2} \left( \frac{\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{p}_2}{r_{12}} + \frac{\mathbf{r}_{12} \cdot (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_1) \mathbf{p}_2}{r_{12}^3} \right) \\
& + \frac{\hbar e^2}{4m^2 c^2 r_{12}^3} ((\boldsymbol{\sigma}_2 + 2\boldsymbol{\sigma}_1) \cdot \mathbf{l}_2 - (\boldsymbol{\sigma}_1 + 2\boldsymbol{\sigma}_2) \cdot \mathbf{l}_1) \\
& - \frac{e^2 \hbar^2}{4m^2 c^2} \left( -8\pi \frac{\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\sigma}_2}{3} \delta(r_{12}) - \frac{\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\sigma}_2}{r_{12}^3} + 3 \frac{(\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\sigma}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{r_{12}^5} \right). \quad (2.18)
\end{aligned}$$

Dans cette expression on voit apparaître l'opérateur coulombien mais aussi des termes en  $1/m^2$  contenant les opérateurs d'impulsion  $\mathbf{p}_1$  et  $\mathbf{p}_2$ , les opérateurs du moment cinétique orbital  $\mathbf{l}_1$  et  $\mathbf{l}_2$  et les opérateurs du moment cinétique de spin  $\mathbf{s}_1 = \frac{\hbar\boldsymbol{\sigma}_1}{2}$  et  $\mathbf{s}_2 = \frac{\hbar\boldsymbol{\sigma}_2}{2}$ .



La première ligne de (2.18) contient les opérateurs suivants :

$$-\frac{\pi\hbar^2 e^2}{m^2 c^2} \delta(r_{12}) - \frac{e^2}{2m^2 c^2} \left( \frac{\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{p}_2}{r_{12}} + \frac{\mathbf{r}_{12} \cdot (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_1) \mathbf{p}_2}{r_{12}^3} \right).$$

Le premier élément est un terme de contact et les deux autres, fonctions des impulsions, sont l'équivalent quantique des termes du lagrangien de Darwin avec  $\mathbf{p} = m\mathbf{v}$ . La seconde ligne de (2.18) représente des interactions entre les moments cinétiques orbitaux et les moments cinétiques de spin :

$$\frac{\hbar e^2}{4m^2 c^2 r_{12}^3} \underbrace{(\boldsymbol{\sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_2 - \boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_1)}_{\text{spin-orbite}} + \frac{\hbar e^2}{2m^2 c^2 r_{12}^3} \underbrace{(\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_2 - \boldsymbol{\sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_1)}_{\text{spin-autre-orbite}}.$$

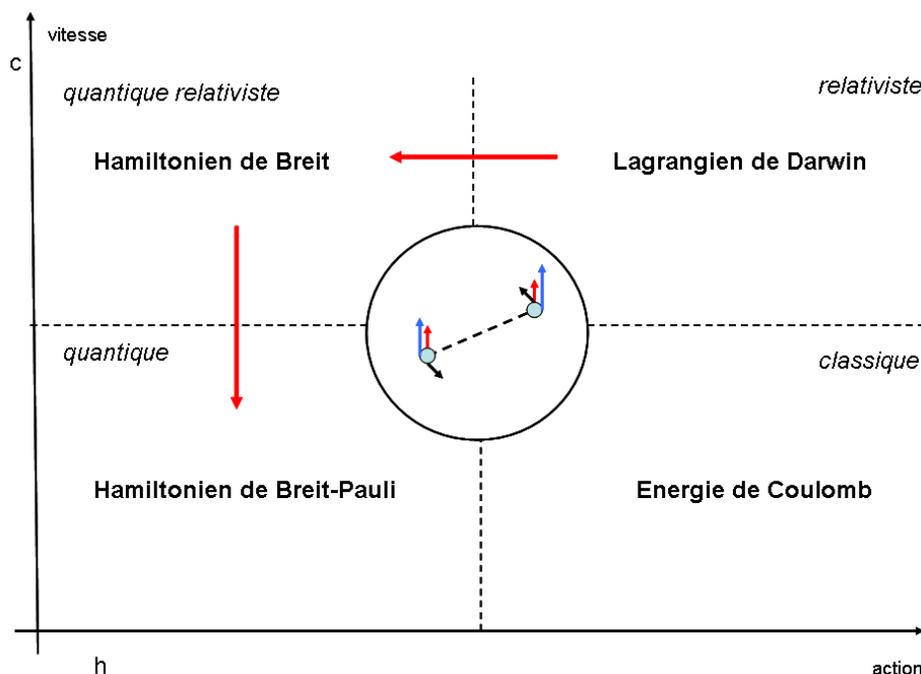
On doit distinguer les termes de couplage spin-orbite et les termes de couplage spin-autre-orbite. Enfin la dernière ligne de (2.18) représente les couplages entre moments cinétiques de spin :

$$-\frac{e^2 \hbar^2}{4m^2 c^2} \left( -8\pi \frac{\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\sigma}_2}{3} \delta(r_{12}) - \frac{\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\sigma}_2}{r_{12}^3} + 3 \frac{(\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\sigma}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{r_{12}^5} \right).$$

Le premier élément est aussi un terme de contact et les deux autres représentent l'interaction dipolaire entre les deux moments magnétiques de spin.

## Intérêts

Le hamiltonien de Breit-Pauli est un outil très performant car il **donne naturellement toutes les interactions possibles** entre les entités physiques présentes dans le problème à deux électrons. Il est important de rappeler que c'est la **diagonalisation du hamiltonien de Breit**, écrit dans le formalisme de Dirac, qui permet de retrouver les **termes d'interaction impliquant le spin**. Une simple substitution de l'impulsion par son opérateur quantique dans le lagrangien de Darwin n'aurait pas permis de recueillir toutes ces informations. On pourra retenir le schéma suivant :



### Obtention du hamiltonien de Breit-Pauli

On peut aboutir à l'expression (2.18) de différentes manières. G. Breit fut le premier à l'obtenir en éliminant les petites composantes liées aux positrons [10]. On rencontre aussi dans la littérature des approches différentes. Dans l'ouvrage *Quantum Mechanics of One and Two Electron Atoms* de H. A. Bethe et E. E. Salpeter [11] le hamiltonien de Breit est diagonalisé dans le plan de Fourier. Une représentation alternative des opérateurs de Dirac est utilisée dans *Introduction to Relativistic Quantum Chemistry* [17]. Deux autres méthodes méritent attention :

- Dans l'ouvrage *Relativistic Quantum Chemistry* [16] le hamiltonien de Breit-Pauli est obtenu par une **transformation de Foldy-Wouthuysen non dépendante du temps** du hamiltonien suivant :

$$\begin{aligned}
 H &= \sum_{i=1}^2 H_i + \frac{e^2}{r_{12}} - e^2 \left( \frac{\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \boldsymbol{\alpha}_2}{2r_{12}} + \frac{(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{2r_{12}^3} \right) \\
 &= H_1 + H_2 + H_B
 \end{aligned}$$

où  $H_i = (c\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \mathbf{p}_i + mc^2\beta_i)$  est le hamiltonien de Dirac d'une particule libre. On détaille un peu cette technique car on s'inspire de celle-ci dans la section suivante. La fonction d'onde totale du système  $\Psi$  est prise dans l'approximation de Hartree  $\Psi = \Psi_1 \otimes \Psi_2$  et la transformation unitaire

de la fonction d'onde s'écrit  $e^{iS}\Psi = e^{iS_1}\Psi_1 \otimes e^{iS_2}\Psi_2$  avec  $S_i$  qui prend la forme usuelle (cf chapitre1) :

$$S_i = \frac{\beta_i T_i}{2mic^2} = \frac{\beta_i c \boldsymbol{\alpha}_i \cdot \mathbf{p}_i}{2mic^2}.$$

Le hamiltonien transformé s'écrit :

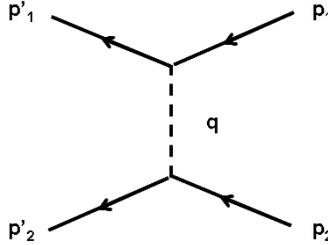
$$e^{iS} (H_1 + H_2 + H_B) e^{-iS} = e^{iS_1} H_1 e^{-iS_1} + e^{iS_2} H_2 e^{-iS_2} + \underbrace{e^{iS_1} e^{iS_2} H_1 e^{-iS_1} e^{-iS_2}}_{H'_B}.$$

En développant  $e^{iS_1} e^{iS_2}$  au second ordre en  $1/m$  selon :

$$e^{iS_1} e^{iS_2} = \left(1 + iS_1 - \frac{1}{2}S_1^2\right) \left(1 + iS_2 - \frac{1}{2}S_2^2\right) = 1 + iS_1 + iS_2 - \frac{1}{2}S_1^2 - \frac{1}{2}S_2^2 - S_1 S_2 + \mathcal{O}(m^{-3}),$$

le calcul du terme  $H'_B$  permet de retrouver le hamiltonien de Breit-Pauli après élimination des composantes non diagonales. On s'inspire de cette méthode dans la section (2.2).

- On trouve aussi dans *Physique Théorique, Electrodynamique Quantique* de L. Landau et E. Lifschitz [19] un développement du hamiltonien de Breit-Pauli obtenu à partir du diagramme de Feynman de diffusion de deux électrons (Théorie quantique relativiste des champs) :



### 2.1.4 Problématique liée à la présence d'un champ externe

En l'absence de champ électromagnétique externe, le hamiltonien quantique non relativiste du système de deux électrons en interaction s'écrit au second ordre en  $1/m$  :

$$H = \sum_{i=1}^2 \frac{\mathbf{p}_i^2}{2m} + H_{BP}, \quad (2.19)$$

où  $H_{BP}$  est donné par (2.18). Dans ce système, le champ électromagnétique provient du potentiel coulombien  $\Phi = e^2/r_{12}$  entre les deux électrons. Or, la présence des termes en  $1/m^2$  du hamiltonien de Breit-Pauli impose de prendre en compte l'existence d'un potentiel vecteur  $\mathbf{A}$  créé par le mouvement des deux électrons. L'expression mathématique de ce potentiel vecteur n'est à priori pas explicitée clairement dans l'expression (2.18) mais il existe. On choisit d'appeler **champ électromagnétique interne**, le champ électromagnétique total du système de deux électrons en interaction, décrit par le couple  $(\Phi_{int}, \mathbf{A}_{int})$  où bien entendu  $\Phi_{int} = e^2/r_{12}$ .

On choisit d'ajouter à ce système un champ électromagnétique externe pouvant dépendre du temps décrit par  $(\Phi_{ext}, \mathbf{A}_{ext})$  et on cherche à écrire de façon exacte le hamiltonien au second ordre en  $1/m$ .

Dans le premier chapitre nous avons établi que le hamiltonien d'un électron en présence d'un champ électromagnétique s'écrivait au second ordre en  $1/m$  :

$$H^{FW} = q\Phi + \frac{(\mathbf{p} - q\mathbf{A})^2}{2m} - \frac{q\hbar}{2m}\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B} - \frac{q\hbar^2}{8m^2c^2}\boldsymbol{\nabla} \cdot \mathbf{E} - \frac{q\hbar}{4m^2c^2}\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - q\mathbf{A})) + \vartheta(m^{-3}). \quad (2.20)$$

Ainsi pour un système de deux électrons en interaction en présence d'un champ externe, on peut supposer que chaque électron ressent individuellement les effets du champ externe et que la partie cinétique de (2.19) doit être remplacée par (2.20). On peut alors distinguer les effets du champ interne décrit par  $(\Phi_{int}, \mathbf{A}_{int})$  et ceux du champ externe décrit par  $(\Phi_{ext}, \mathbf{A}_{ext})$  :

$$H = \sum_{i=1}^2 H_i^{FW}(\Phi_{ext}, \mathbf{A}_{ext}) + H_{BP}(\Phi_{int}, \mathbf{A}_{int}). \quad (2.21)$$

Il faut prendre cependant quelques précautions car cette conclusion n'est peut-être pas correcte et ceci pour plusieurs raisons :

- Tout d'abord l'expression (2.18) du hamiltonien de Breit-Pauli est obtenue en l'absence de champ électromagnétique externe. Nous ne sommes pas en mesure d'affirmer qu'en présence d'un tel champ, l'expression est identique.
- Ensuite nous avons vu dans le premier chapitre que la diagonalisation du hamiltonien de Dirac en présence d'un champ dépendant du temps conduisait à des termes d'interaction dépendant explicitement de la dérivée temporelle du champ électromagnétique. Cette particularité se manifeste à partir du troisième ordre en  $1/m$  et il est important de savoir si une telle propriété peut se répercuter sur le hamiltonien d'interaction.
- Le hamiltonien de FW issu de la diagonalisation du hamiltonien de Dirac et le hamiltonien de Breit-Pauli provenant de la diagonalisation du hamiltonien de Breit ont été déterminés séparément.

Nous pensons qu'il serait judicieux de réaliser une **transformation de Foldy-Wouthuysen du hamiltonien total du système de deux électrons en interaction en présence d'un champ électromagnétique externe dépendant du temps**. Pour cela il faut partir du formalisme de Dirac et développer une TFW dépendante du temps au moins jusqu'au troisième ordre en  $1/m$ . La problématique est donc résumée de la manière suivante :

$$H = \sum_{i=1}^2 (c\boldsymbol{\alpha}_i \cdot (\mathbf{p}_i - q_i\mathbf{A}) + m_i c^2 \beta_i + q_i \Phi) + \frac{e^2}{r_{12}} - e^2 \left( \frac{\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \boldsymbol{\alpha}_2}{2r_{12}} + \frac{(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{2r_{12}^3} \right)$$

$\downarrow$   
*TFW*

$$? \quad ? \quad ? + \vartheta(m^{-4}).$$

Pour réaliser ce travail on va s'inspirer de la méthode développée dans [16] mais en y incorporant l'aspect temporel de la TFW exposée dans [12].

## 2.2 TFW du hamiltonien de Breit

On rappelle brièvement comment est construit la TFW pour un électron en présence d'un champ externe dépendant du temps et on propose une extension au cas de deux électrons en interaction.

Cette TFW "bi-électronique" agit sur le hamiltonien de Breit et conduit à définir un **hamiltonien d'interaction transformé**. Dans une première étape (section (2.2.2)) on développe son expression au troisième ordre en  $1/m$ . La seconde étape (section (2.2.3)) consiste à discuter de la diagonalisation qui sépare particule et anti-particule. Enfin, on discute en section (2.2.4) de l'impact du champ externe dépendant du temps et de la pertinence de la procédure utilisée. La forme explicite du hamiltonien ne sera pas abordée dans cette section.

### 2.2.1 Choix d'une procédure

On rappelle que pour un bispineur  $\Psi$  dont l'évolution est donnée par l'équation de Dirac, la transformation unitaire de la fonction d'onde conduit à un nouvel hamiltonien  $H'$  appelé hamiltonien transformé de Foldy-Wouthuysen :

$$H'\Psi' = i\hbar \frac{\partial \Psi'}{\partial t} \quad \left\{ \begin{array}{l} H' = e^{iS} \left( H - \frac{\partial}{\partial t} \right) e^{-iS} \\ \Psi' = e^{iS} \Psi \end{array} \right. ,$$

avec  $S$  un opérateur hermitique développable en puissance de l'inverse de la masse. On cherche à réaliser une extension de cette transformation pour **un système de deux électrons i et j ( $\mathbf{m}_i = \mathbf{m}_j = \mathbf{m}$ ) en interaction coulombienne en présence d'un champ électromagnétique externe variable dans le temps** décrit par  $(\Phi, \mathbf{A})$ . Dans le formalisme quantique relativiste, le hamiltonien d'une particule individuelle i en interaction avec un champ est le hamiltonien de Dirac  $H_i$ . L'interaction coulombienne entre les particules i et j est décrite à l'aide du hamiltonien de Breit  $H_B$ . La fonction d'onde totale du système est donnée dans l'approximation de Hartree, comme produit de fonctions d'onde monoélectroniques. L'équation d'évolution du système s'écrit :

$$H\Psi = (H_i + H_j + H_B)\Psi = i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t} \quad \left\{ \begin{array}{l} \Psi = \Psi_i \otimes \Psi_j \\ H_i = c\boldsymbol{\alpha}_i \cdot (\mathbf{p}_i - q_i\mathbf{A}) + mc^2\beta_i + q_i\Phi \\ H_B = \frac{e^2}{r_{ij}} - e^2 \left( \frac{\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \boldsymbol{\alpha}_j}{2r_{ij}} + \frac{(\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})(\boldsymbol{\alpha}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{2r_{ij}^3} \right) \end{array} \right. .$$

Si on réalise une transformation unitaire du type  $\Psi' = e^{iS}\Psi = e^{iS}(\Psi_i \otimes \Psi_j)$  le hamiltonien transformé du système devient :

$$H' = e^{iS} \left( H_i + H_j + H_B - \frac{\partial}{\partial t} \right) e^{-iS}. \quad (2.22)$$

Pour poursuivre le développement il faut définir un opérateur  $S$  qui puisse tenir compte des deux électrons. En s'inspirant de [16] on définit :

$$S \equiv S_i + S_j. \quad (2.23)$$

mais où l'opérateur  $S_i$  est l'opérateur déterminé lors d'une TFW réalisée sur un système à un électron i en interaction avec un champ externe (section (1.2.3)). La transformation unitaire de la fonction d'onde totale se précise selon :

$$e^{iS}\Psi \equiv (e^{iS_i} \otimes e^{iS_j})(\Psi_i \otimes \Psi_j) = (e^{iS_i}\Psi_i) \otimes (e^{iS_j}\Psi_j).$$

On adopte ici la notation du produit tensoriel pour préciser que l'opérateur  $e^{iS_i}$  agit uniquement sur le hamiltonien et sur la fonction d'onde relatifs à l'électron i et n'a aucune action sur le hamiltonien ou la fonction d'onde de l'électron j. Partant de ces définitions le développement de l'équation (2.22)

donne :

$$\begin{aligned}
H' &= e^{iS_i} \otimes e^{iS_j} \left( H_i + H_j + H_B - \frac{\partial}{\partial t} \right) e^{-iS_i} \otimes e^{-iS_j} \\
&= e^{iS_i} H_i e^{-iS_i} \otimes (e^{iS_j} e^{-iS_j}) + (e^{iS_i} e^{-iS_i}) \otimes e^{iS_j} H_j e^{-iS_j} + e^{iS_i} \otimes e^{iS_j} H_B e^{-iS_i} \otimes e^{-iS_j} \\
&\quad - e^{iS_i} \frac{\partial}{\partial t} e^{-iS_i} \otimes (e^{iS_j} e^{-iS_j}) - (e^{iS_i} e^{-iS_i}) \otimes e^{iS_j} \frac{\partial}{\partial t} e^{-iS_j} \\
&= e^{iS_i} H_i e^{-iS_i} - e^{iS_i} \frac{\partial}{\partial t} e^{-iS_i} + e^{iS_j} H_j e^{-iS_j} - e^{iS_j} \frac{\partial}{\partial t} e^{-iS_j} + e^{iS_i} \otimes e^{iS_j} H_B e^{-iS_i} \otimes e^{-iS_j} \\
&= e^{iS_i} \left( H_i - \frac{\partial}{\partial t} \right) e^{-iS_i} + e^{iS_j} \left( H_j - \frac{\partial}{\partial t} \right) e^{-iS_j} + e^{iS_i} \otimes e^{iS_j} H_B e^{-iS_i} \otimes e^{-iS_j} \\
&= H'_i + H'_j + e^{iS_i} \otimes e^{iS_j} H_B e^{-iS_i} \otimes e^{-iS_j}. \tag{2.24}
\end{aligned}$$

Dans la formule (2.24) on voit apparaître les TFW mono-électroniques  $H'_i$  et  $H'_j$  pour les particules  $i$  et  $j$  prises individuellement, et un terme supplémentaire qui agit sur le hamiltonien d'interaction. On peut donc affirmer qu'avec la définition (2.23), l'action de la TFW sur le système de deux électrons en interaction restitue l'action de la transformation pour les deux particules isolées, et transforme le hamiltonien d'interaction par le biais de l'application suivante :

$$H_B \mapsto H'_B \equiv H_B^{FW} = e^{iS_i} \otimes e^{iS_j} H_B e^{-iS_i} \otimes e^{-iS_j}. \tag{2.25}$$

Remarques :

- On peut remarquer que le choix de l'opérateur  $S = S_i + S_j$  est cohérent dans la mesure où si l'on supprime l'une ou l'autre particule, et par là même, leur interaction, la transformation redonne la TFW du problème à une particule.
- Le choix de l'opérateur  $S = S_i + S_j$  bien que cohérent est complètement arbitraire. Nous aurons l'occasion d'en discuter dans la section (2.2.4) où d'autres choix apparaîtront plus judicieux.
- En choisissant pour l'opérateur  $S_i$  (et  $S_j$ ) l'expression au troisième ordre en  $1/m$  :

$$S_i = \frac{\beta_i T_i}{2mic^2} - \frac{\hbar \dot{T}_i}{m^2 (2ic^2)^2} + \frac{\beta_i}{m^3 (2ic^2)^3} \left( \frac{4}{3} T_i^3 + \hbar^2 \ddot{T}_i \right) + \vartheta(m^{-4}),$$

on incorpore les informations relatives à la dépendance temporelle qui ne sont pas prises en compte dans [16] et on peut en étudier l'influence sur le hamiltonien d'interaction.

## 2.2.2 Etape 1 : Développement au troisième ordre en $1/m$

On souhaite développer le hamiltonien d'interaction transformé au troisième ordre en  $1/m$  c'est-à-dire obtenir une expression du type :

$$\begin{aligned}
H_B^{FW} &= e^{iS_i} \otimes e^{iS_j} H_B e^{-iS_i} \otimes e^{-iS_j} \\
&= H_B + m^{-1} H_B^{FW(1)} + m^{-2} H_B^{FW(2)} + m^{-3} H_B^{FW(3)} + \vartheta(m^{-4}). \tag{2.26}
\end{aligned}$$

Cette possibilité d'expansion en puissance de l'inverse de la masse provient des opérateurs  $S_i$  et  $S_j$ , opérateurs de la TFW monoélectronique et définis selon :

$$\begin{cases} S_i = S_{i1}m^{-1} + S_{i2}m^{-2} + S_{i3}m^{-3} + \vartheta(m^{-4}) \\ S_j = S_{j1}m^{-1} + S_{j2}m^{-2} + S_{j3}m^{-3} + \vartheta(m^{-4}) \end{cases} .$$

Le développement au troisième ordre est **réalisé en deux étapes** :

- **i)** On détermine d'abord l'expression de  $H_B^{FW}$  en fonction des opérateurs  $S_{ik}$  et  $S_{jk}$  pour  $k = 1, 2, 3$ .
- **ii)** On remplace ensuite ces fonctions par leur expressions données par la TFW obtenues en section (1.2.3).

**i) Expression en fonctions des opérateurs  $S_{ik}$  et  $S_{jk}$**

Pour obtenir la forme (2.26) il faut au préalable développer l'exponentielle au troisième ordre; par exemple pour le terme indicé  $i$  :

$$e^{iS_i} = 1 + iS_i + \frac{i^2}{2!}S_i^2 + \frac{i^3}{3!}S_i^3 + \vartheta(m^{-4}).$$

Nous rappelons les expressions des puissances de l'opérateur  $S_i$  à l'ordre 3 en  $(1/m)$  qui sont alors nécessaires :

$$\begin{aligned} S_i &= S_{i1}m^{-1} + S_{i2}m^{-2} + S_{i3}m^{-3} + \vartheta(m^{-4}) \\ S_i^2 &= S_{i1}^2m^{-2} + (S_{i1}S_{i2} + S_{i2}S_{i1})m^{-3} + \vartheta(m^{-4}) \\ S_i^3 &= S_{i1}^3m^{-3} + \vartheta(m^{-4}). \end{aligned}$$

Pour obtenir l'expression du hamiltonien  $e^{iS_i}e^{iS_j}H_B e^{-iS_i}e^{-iS_j}$  il suffit de calculer en premier lieu le produit des opérateurs à gauche  $e^{iS_i}e^{iS_j}$ , le produit à droite étant le complexe conjugué. On commence par déterminer  $e^{iS_i}$ . Les expressions des puissances de  $S_i$  sont remplacées dans le développement de l'exponentielle :

$$\begin{aligned} e^{iS_i} &= 1 + i(S_{i1}m^{-1} + S_{i2}m^{-2} + S_{i3}m^{-3}) - \frac{1}{2}(S_{i1}^2m^{-2} + (S_{i1}S_{i2} + S_{i2}S_{i1})m^{-3}) - \frac{i}{6}S_{i1}^3m^{-3} + \dots \\ &= 1 + (iS_{i1})m^{-1} + \left(iS_{i2} - \frac{1}{2}S_{i1}^2\right)m^{-2} + \left(iS_{i3} - \frac{1}{2}(S_{i1}S_{i2} + S_{i2}S_{i1}) - \frac{i}{6}S_{i1}^3\right)m^{-3} + \vartheta(m^{-4}) \\ &= 1 + [\mathbf{\Gamma}_i]_1m^{-1} + [\mathbf{\Gamma}_i]_2m^{-2} + [\mathbf{\Gamma}_i]_3m^{-3} + \vartheta(m^{-4}), \end{aligned} \quad (2.27)$$

où les termes  $[\mathbf{\Gamma}_i]_k$  représentent la contribution des opérateurs  $S_i$  à l'ordre  $k$  ( $k = 1, 2, 3$ ) :

$$\begin{cases} [\mathbf{\Gamma}_i]_1 = iS_{i1} \\ [\mathbf{\Gamma}_i]_2 = iS_{i2} - \frac{1}{2}S_{i1}^2 \\ [\mathbf{\Gamma}_i]_3 = iS_{i3} - \frac{1}{2}(S_{i1}S_{i2} + S_{i2}S_{i1}) - \frac{i}{6}S_{i1}^3 \end{cases} . \quad (2.28)$$

On aura de même pour l'opérateur  $e^{iS_j}$  à l'ordre 3 en  $1/m$  en substituant l'indice  $j$  à l'indice  $i$  :

$$e^{iS_j} = 1 + [\mathbf{\Gamma}_j]_1m^{-1} + [\mathbf{\Gamma}_j]_2m^{-2} + [\mathbf{\Gamma}_j]_3m^{-3} + \vartheta(m^{-4}). \quad (2.29)$$

Le produit  $e^{iS_i}e^{iS_j}$  s'obtient en multipliant (2.27) et (2.29) :

$$\begin{aligned} e^{iS_i}e^{iS_j} &= (1 + [\Gamma_i]_1 m^{-1} + [\Gamma_i]_2 m^{-2} + [\Gamma_i]_3 m^{-3}) (1 + [\Gamma_j]_1 m^{-1} + [\Gamma_j]_2 m^{-2} + [\Gamma_j]_3 m^{-3}) \\ &= 1 + ([\Gamma_i]_1 + [\Gamma_j]_1) m^{-1} + ([\Gamma_i]_2 + [\Gamma_j]_2 + [\Gamma_i]_1 [\Gamma_j]_1) m^{-2} \\ &\quad + ([\Gamma_i]_3 + [\Gamma_j]_3 + [\Gamma_i]_1 [\Gamma_j]_2 + [\Gamma_i]_2 [\Gamma_j]_1) m^{-3} + \vartheta(m^{-4}) \end{aligned} \quad (2.30)$$

$$\equiv 1 + Am^{-1} + Bm^{-2} + Cm^{-3} + \vartheta(m^{-4}). \quad (2.31)$$

Avec les expressions de  $A$ ,  $B$  et  $C$  déterminées par (2.30) et (2.28) :

$$A = [\Gamma_i]_1 + [\Gamma_j]_1 = i(S_{i1} + S_{j1}) \quad (2.32)$$

$$B = [\Gamma_i]_2 + [\Gamma_j]_2 + [\Gamma_i]_1 [\Gamma_j]_1 = iS_{i2} - \frac{1}{2}S_{i1}^2 + iS_{j2} - \frac{1}{2}S_{j1}^2 - S_{i1}S_{j1} \quad (2.33)$$

$$\begin{aligned} C &= [\Gamma_i]_3 + [\Gamma_j]_3 + [\Gamma_i]_1 [\Gamma_j]_2 + [\Gamma_i]_2 [\Gamma_j]_1 \\ &= iS_{i3} - \frac{1}{2}(S_{i1}S_{i2} + S_{i2}S_{i1}) - \frac{i}{6}S_{i1}^3 + iS_{j3} - \frac{1}{2}(S_{j1}S_{j2} + S_{j2}S_{j1}) \\ &\quad - \frac{i}{6}S_{j1}^3 - S_{i1}S_{j2} - \frac{i}{2}S_{i1}S_{j1}^2 - S_{i2}S_{j1} - \frac{i}{2}S_{i1}^2S_{j1}. \end{aligned} \quad (2.34)$$

L'opérateur de droite  $e^{-iS_i}e^{-iS_j}$  n'est d'autre que le complexe conjugué de ce qui vient d'être déterminé. Ce qui permet d'écrire directement :

$$e^{-iS_i}e^{-iS_j} = 1 + A^*m^{-1} + B^*m^{-2} + C^*m^{-3}.$$

**Il est important de préciser** que l'on entend par complexe conjugué l'action de substituer  $i$  par  $-i$  dans les expressions (2.32),(2.33) et(2.34), ce qui donne :

$$A^* = [\Gamma_i]_1^* + [\Gamma_j]_1^* = -i(S_{i1} + S_{j1}) \quad (2.35)$$

$$B^* = [\Gamma_i]_2^* + [\Gamma_j]_2^* + [\Gamma_i]_1^* [\Gamma_j]_1^* = -iS_{i2} - \frac{1}{2}S_{i1}^2 - iS_{j2} - \frac{1}{2}S_{j1}^2 - S_{i1}S_{j1} \quad (2.36)$$

$$\begin{aligned} C^* &= [\Gamma_i]_3^* + [\Gamma_j]_3^* + [\Gamma_i]_1^* [\Gamma_j]_2^* + [\Gamma_i]_2^* [\Gamma_j]_1^* \\ &= -iS_{i3} - \frac{1}{2}(S_{i1}S_{i2} + S_{i2}S_{i1}) + \frac{i}{6}S_{i1}^3 - iS_{j3} - \frac{1}{2}(S_{j1}S_{j2} + S_{j2}S_{j1}) \\ &\quad + \frac{i}{6}S_{j1}^3 - S_{i1}S_{j2} + \frac{i}{2}S_{i1}S_{j1}^2 - S_{i2}S_{j1} + \frac{i}{2}S_{i1}^2S_{j1}. \end{aligned} \quad (2.37)$$

On développe ensuite (2.38) et on regroupe les termes en puissance de l'inverse de la masse pour finalement obtenir l'expression du hamiltonien d'interaction transformé au troisième ordre en  $1/m$  :

$$H_B^{FW} = (1 + Am^{-1} + Bm^{-2} + Cm^{-3}) H_B (1 + A^*m^{-1} + B^*m^{-2} + C^*m^{-3}) \quad (2.38)$$

$$= H_B + m^{-1}(AH_B + H_BA^*) + m^{-2}(BH_B + H_BB^* + AH_BA^*)$$

$$m^{-3}(CH_B + H_BC^* + AH_BB^* + BH_BA^*) + \vartheta(m^{-4})$$

$$= H_B + m^{-1}H_B^{FW(1)} + m^{-2}H_B^{FW(2)} + m^{-3}H_B^{FW(3)} + \vartheta(m^{-4}).$$

Les opérateurs  $H_B^{FW(k)}$  s'écrivent :

$$H_B^{FW(1)} = (AH_B + H_B A^*) \quad (2.39)$$

$$H_B^{FW(2)} = (BH_B + H_B B^* + AH_B A^*) \quad (2.40)$$

$$H_B^{FW(3)} = (CH_B + H_B C^* + AH_B B^* + BH_B A^*). \quad (2.41)$$

## ii) Expression en des termes usuels de la TFW

On précise à présent les formules (2.39), (2.40) et (2.41) en calculant  $A$ ,  $B$ ,  $C$  et leurs complexes conjugués, à l'aide des expressions des opérateurs  $S_{ik}$  obtenues par la TFW monoélectronique :

$$\begin{aligned} S_{i1} &= \frac{\beta_i T_i}{2ic^2} \\ S_{i2} &= \frac{-\hbar \dot{T}_i}{(2ic^2)^2} \\ S_{i3} &= \frac{\beta_i}{(2ic^2)^3} \left( \frac{4}{3} T_i^3 + \hbar^2 \ddot{T}_i \right). \end{aligned}$$

Pour le **hamiltonien transformé au premier ordre** en  $(1/m)$ , il faut calculer  $A$  et  $A^*$  :

$$\begin{aligned} A &= i(S_{i1} + S_{j1}) = \frac{1}{2c^2} (\beta_i T_i + \beta_j T_j) \\ A^* &= -i(S_{i1} + S_{j1}) = -\frac{1}{2c^2} (\beta_i T_i + \beta_j T_j). \end{aligned}$$

L'expression (2.39) devient :

$$H_B^{FW(1)} = \frac{1}{2c^2} [\beta_i T_i + \beta_j T_j, H_B]. \quad (2.42)$$

La détermination du **hamiltonien transformé au second ordre** en  $1/m$  passe par la détermination préliminaire de  $B$  et  $B^*$  :

$$\begin{aligned} B &= iS_{i2} - \frac{1}{2} S_{i1}^2 + iS_{j2} - \frac{1}{2} S_{j1}^2 - S_{i1} S_{j1} \\ &= \frac{1}{(2ic^2)^2} \left( -i\hbar \dot{T}_i - \frac{1}{2} (\beta_i T_i)^2 - i\hbar \dot{T}_j - \frac{1}{2} (\beta_j T_j)^2 - (\beta_i T_i)(\beta_j T_j) \right) \\ B^* &= \frac{1}{(2ic^2)^2} \left( i\hbar \dot{T}_i - \frac{1}{2} (\beta_i T_i)^2 + i\hbar \dot{T}_j - \frac{1}{2} (\beta_j T_j)^2 - (\beta_i T_i)(\beta_j T_j) \right). \end{aligned}$$

On regroupe ensuite les termes  $BH_B + H_B B^*$  et on détermine facilement  $AH_B A^*$  :

$$\begin{aligned} BH_B + H_B B^* &= \frac{1}{(2ic^2)^2} \left( -i\hbar [\dot{T}_i, H_B] - i\hbar [\dot{T}_j, H_B] - \frac{1}{2} \{ (\beta_i T_i)^2 + (\beta_j T_j)^2, H_B \} - \{ (\beta_i T_i)(\beta_j T_j), H_B \} \right) \\ AH_B A^* &= \frac{1}{(2ic^2)^2} (\beta_i T_i + \beta_j T_j) H_B (\beta_i T_i + \beta_j T_j). \end{aligned}$$

Les deux expressions précédentes donnent pour (2.40) :

$$\begin{aligned} H_B^{FW(2)} &= \frac{1}{(2ic^2)^2} \left( -i\hbar [\dot{T}_i, H_B] - i\hbar [\dot{T}_j, H_B] - \frac{1}{2} \{ (\beta_i T_i)^2, H_B \} - \{ (\beta_i T_i)(\beta_j T_j), H_B \} \right. \\ &\quad \left. - \frac{1}{2} \{ (\beta_j T_j)^2, H_B \} + (\beta_i T_i + \beta_j T_j) H_B (\beta_i T_i + \beta_j T_j) \right). \quad (2.43) \end{aligned}$$

Pour le **hamiltonien transformé au troisième ordre en  $(1/m)$**  les expressions deviennent de plus en plus lourdes. Nous ne développerons pas ici les calculs et laissons le soin au lecteur de les vérifier par lui-même. On rappelle la formule (2.41) :

$$H_B^{FW(3)} = (AH_B B^* + BH_B A^* + CH_B + H_B C^*).$$

Le premier terme  $AH_B B^*$  vaut

$$\begin{aligned} AH_B B^* = & \frac{1}{(2ic^2)^3} \left( (\beta_i T_i) H_B (-\hbar \dot{T}_i) - \frac{i}{2} (\beta_i T_i) H_B (\beta_i T_i) (\beta_i T_i) + (\beta_i T_i) H_B (-\hbar \dot{T}_j) \right. \\ & - \frac{i}{2} (\beta_i T_i) H_B (\beta_j T_j) (\beta_j T_j) - i (\beta_i T_i) H_B (\beta_i T_i) (\beta_i T_j) + (\beta_j T_j) H_B (-\hbar \dot{T}_i) \\ & - \frac{i}{2} (\beta_j T_j) H_B (\beta_i T_i) (\beta_i T_i) + (\beta_j T_j) H_B (-\hbar \dot{T}_j) \\ & \left. - \frac{i}{2} (\beta_j T_j) H_B (\beta_j T_j) (\beta_j T_j) - i (\beta_j T_j) H_B (\beta_i T_i) (\beta_j T_j) \right). \end{aligned} \quad (2.44)$$

Le second terme  $BH_B A^*$  s'écrit :

$$\begin{aligned} BH_B A^* = & \frac{1}{(2ic^2)^3} \left( (-\hbar \dot{T}_i) H_B (\beta_i T_i) + \frac{i}{2} (\beta_i T_i) (\beta_i T_i) H_B (\beta_i T_i) + (-\hbar \dot{T}_j) H_B (\beta_i T_i) \right. \\ & + \frac{i}{2} (\beta_j T_j) (\beta_j T_j) H_B (\beta_i T_i) + i (\beta_i T_i) (\beta_i T_j) H_B (\beta_i T_i) + (-\hbar \dot{T}_i) H_B (\beta_j T_j) \\ & + \frac{i}{2} (\beta_i T_i) (\beta_i T_i) H_B (\beta_j T_j) + (-\hbar \dot{T}_j) H_B (\beta_j T_j) \\ & \left. + \frac{i}{2} (\beta_j T_j) (\beta_j T_j) H_B (\beta_j T_j) + i (\beta_i T_i) (\beta_j T_j) H_B (\beta_j T_j) \right). \end{aligned} \quad (2.45)$$

Finalement, le troisième terme  $CH_B + H_B C^*$  vaut :

$$\begin{aligned} CH_B + H_B C^* = & \frac{1}{(2ic^2)^3} \left( +\frac{7i}{6} [\beta_i T_i^3, H_B] + \frac{\hbar \beta_i}{2} \{[T_i, \dot{T}_i], H_B\} + \hbar^2 [\beta_i \ddot{T}_i, H_B] + \frac{7i}{6} [\beta_j T_j^3, H_B] \right. \\ & + \frac{\hbar \beta_j}{2} \{[T_j, \dot{T}_j], H_B\} + \hbar^2 [\beta_j \ddot{T}_j, H_B] + \hbar \{(\beta_i T_i) \dot{T}_j, H_B\} \\ & \left. + \frac{\hbar}{2} \{\dot{T}_i (\beta_j T_j), H_B\} - \frac{i}{2} [(\beta_i T_i) T_j^2, H_B] - \frac{i}{2} [T_j^2 (\beta_j T_j), H_B] \right). \end{aligned} \quad (2.46)$$

On peut donner à présent le hamiltonien d'interaction transformé dans le formalisme de Dirac au troisième ordre en  $1/m$

$$\begin{aligned} H_B^{FW} = & H_B + \frac{1}{2mc^2} [\beta_i T_i + \beta_j T_j, H_B] + \frac{1}{m^2 (2ic^2)^2} \left( -i\hbar [\dot{T}_i, H_B] - i\hbar [\dot{T}_j, H_B] - \frac{1}{2} \{(\beta_i T_i)^2, H_B\} \right. \\ & \left. - \{(\beta_i T_i) (\beta_j T_j), H_B\} - \frac{1}{2} \{(\beta_j T_j)^2, H_B\} + (\beta_i T_i + \beta_j T_j) H_B (\beta_i T_i + \beta_j T_j) \right) \\ & + \frac{1}{m^3 (2ic^2)^3} ((2.44) + (2.45) + (2.46)) + \vartheta (m^{-4}). \end{aligned} \quad (2.47)$$

Cependant la formule (2.47) n'est pas diagonale car elle est toujours écrite en formalisme de Dirac. Les termes du hamiltonien transformé sont des commutateurs et anticommutateurs des opérateurs d'énergie cinétique  $\beta_i T_i$  et  $\beta_j T_j$  avec le hamiltonien d'interaction  $H_B$ . Ces trois termes sont exprimés en fonction des matrices de Dirac  $\alpha_i$  et  $\alpha_j$  dont les propriétés non-commutatives imposent des équations d'évolution couplées pour les grandes et petites composantes.

### 2.2.3 Etape 2 : Diagonalisation

Pour recueillir les informations relatives aux deux électrons seuls il faut que  $H_B^{FW}$  soit un opérateur diagonal pour les vecteurs d'états des deux particules. A partir de maintenant, **les indices  $i$  et  $j$  deviennent 1 et 2**.

#### Notion de parité

Parmi les opérateurs obtenus à chaque ordre en  $(1/m)$  il faut déterminer les opérateurs diagonaux et non diagonaux et évoquer la notion de parité. Pour cela rappelons les propriétés des matrices de Dirac et leur structure mathématique. Pour chaque électron (1 ou 2) avec  $(i, k = x, y$  ou  $z)$  les axes du repère cartésien on a :

$$\left\{ \begin{array}{l} \{\alpha_{1i}, \alpha_{1k}\} = 2\delta_{ik} \\ \{\alpha_{1i}, \beta_1\} = 0 \end{array} \right. \quad \left\{ \begin{array}{l} \{\alpha_{2i}, \alpha_{2k}\} = 2\delta_{ik} \\ \{\alpha_{2i}, \beta_2\} = 0 \end{array} \right. ,$$

avec les matrices :

$$\alpha_1 = \begin{bmatrix} 0 & \sigma_1 \\ \sigma_1 & 0 \end{bmatrix} \quad \beta_1 = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix} \quad \alpha_2 = \begin{bmatrix} 0 & \sigma_2 \\ \sigma_2 & 0 \end{bmatrix} \quad \beta_2 = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix} .$$

Le couplage avec l'anti-matière est mathématiquement dû à la structure non diagonale des matrices  $\alpha$ . La diagonalisation consiste à obtenir des opérateurs mathématiquement diagonaux. On rappelle qu'un opérateur représenté par une **matrice non diagonale** anticommute avec  $\beta$  : c'est un opérateur dit **impair** noté  $A_i$ . Un opérateur représenté par une **matrice diagonale** commute avec  $\beta$  : c'est un opérateur dit **pair** noté  $A_p$ . Ainsi, parmi les opérateurs du hamiltonien d'interaction transformé des deux électrons, les opérateurs qui nous intéressent sont ceux qui commutent à la fois avec  $\beta_1$  et  $\beta_2$ . **Ils doivent donc remplir la double condition :**

$$[\beta_1, A_p] = 0 \quad [\beta_2, A_p] = 0.$$

#### Remarques importantes :

- Nous allons tout d'abord déterminer la parité de chaque opérateurs de (2.47) par rapport à  $\beta_1$  et  $\beta_2$ .
- Nous ne conserverons parmi ces termes que les éléments qui remplissent la condition de double parité en supposant que ce sont eux qui forment le hamiltonien bi-électronique. **Ce choix est critiquable, nous en reparlerons en fin de section.**
- Ainsi les termes que nous choisissons de conserver sont ceux qui remplissent la double condition : ils sont pairs par rapport à  $\beta_1$  et pairs par rapport à  $\beta_2$ . Pour cela il convient d'abord d'examiner la structure matricielle du hamiltonien d'interaction  $H_B$  car il comprend des termes de parité différentes. En effet :

$$H_B = \frac{e^2}{r_{12}} - e^2 \left( \frac{\alpha_1 \cdot \alpha_2}{2r_{12}} + \frac{(\alpha_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\alpha_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{2r_{12}^3} \right) = V + B_0,$$

avec les quantités  $V$  et  $B_0$  que l'on exprime de manière symbolique par :

$$\left\{ \begin{array}{l} V = \frac{e^2}{r_{12}} \equiv f\left(\frac{1}{r}\right) \\ B_0 = -e^2 \left( \frac{\alpha_1 \cdot \alpha_2}{2r_{12}} + \frac{(\alpha_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\alpha_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{2r_{12}^3} \right) \equiv f\left(\frac{\alpha_1 \alpha_2}{r}\right) \end{array} \right. .$$

$V$  est le terme d'interaction coulombienne, il n'est fonction ni de  $\alpha_1$ , ni de  $\alpha_2$  et par conséquent commute avec  $\beta_1$  et  $\beta_2$ . C'est donc un opérateur pair par rapport à  $\beta_1$  et  $\beta_2$  :

$$[\beta_1, V] = 0 \quad [\beta_2, V] = 0.$$

$B_0$  est le terme retardé de Breit. Il est fonction du produit  $\alpha_1 \alpha_2$ . Il anticommute avec  $\beta_1$  et  $\beta_2$ . C'est un opérateur impair par rapport à  $\beta_1$  et  $\beta_2$  :

$$\{\beta_1, B_0\} = 0 \quad \{\beta_2, B_0\} = 0.$$

Ainsi il faut déterminer la parité de chaque élément de (2.47) en prenant soin de séparer  $V$  et  $B_0$  et ne conserver exclusivement que les opérateurs pairs par rapport à  $\beta_1$  et  $\beta_2$ .

### Séparation des contributions paires et impaires

\* **A l'ordre 0 en  $1/m$**  le hamiltonien transformé est le hamiltonien de Breit  $H_B^{FW(0)} = H_B = V + B_0$ , les résultats du paragraphe précédent donnent directement (en notant  $P$  pour pair et  $I$  pour impair) :

	$V$	$B_0$
$\beta_1$	$P$	$I$
$\beta_2$	$P$	$I$

Le terme de Breit n'est pas conservé, il ne subsiste que l'interaction coulombienne. On retrouve logiquement que le premier terme d'interaction entre les deux électrons est l'interaction électromagnétique instantanée.

\* **Pour le premier ordre en  $1/m$**  la séparation de  $V$  et  $B_0$  dans (2.47) donne :

$$\begin{aligned} H_B^{FW(1)} &= \frac{i}{2ic^2} [\beta_1 T_1 + \beta_2 T_2, V] + \frac{i}{2ic^2} [\beta_1 T_1 + \beta_2 T_2, B_0] \\ &= \frac{i}{2ic^2} ([\beta_1 T_1, V] + [\beta_2 T_2, V] + [\beta_1 T_1, B_0] + [\beta_2 T_2, B_0]). \end{aligned}$$

Les résultats de parité sont exposés dans le tableau suivant :

	$[\beta_1 T_1, V]$	$[\beta_2 T_2, V]$	$[\beta_1 T_1, B_0]$	$[\beta_2 T_2, B_0]$
$\beta_1$	$I$	$P$	$P$	$I$
$\beta_2$	$P$	$I$	$I$	$P$

On voit que la **condition de double parité n'est remplie pour aucun des opérateurs**. Nous proposons de vérifier ce résultat pour l'un d'entre eux. Prenons par exemple le premier  $[\beta_1 T_1, V]$  et calculons les commutateurs de  $\beta_1$  et  $\beta_2$  avec cet opérateur. Notons par souci de simplification  $V = \frac{1}{r}$ . L'opérateur s'écrit avec les conventions adoptées :

$$[\beta_1 T_1, V] = [\beta_1 T_1, \frac{1}{r}] = \left( \beta_1 T_1 \frac{1}{r} - \frac{1}{r} \beta_1 T_1 \right).$$

Le premier commutateur par rapport à  $\beta_1$  vaut :

$$\begin{aligned} \left[ \beta_1, \left[ \beta_1 T_1, \frac{1}{r} \right] \right] &= \beta_1 \beta_1 T_1 \frac{1}{r} - \beta_1 \frac{1}{r} \beta_1 T_1 - \beta_1 T_1 \frac{1}{r} \beta_1 + \frac{1}{r} \beta_1 T_1 \beta_1 = \beta_1 \beta_1 T_1 \frac{1}{r} - \beta_1 \frac{1}{r} \beta_1 T_1 + \beta_1 \beta_1 T_1 \frac{1}{r} - \frac{1}{r} \beta_1 \beta_1 T_1 \\ &= 2 \left[ T_1, \frac{1}{r} \right] \neq 0. \end{aligned}$$

L'opérateur  $[\beta_1 T_1, \frac{1}{r}]$  est bien impair par rapport à  $\beta_1$ . La parité par rapport à  $\beta_2$  se vérifie selon :

$$\begin{aligned} \left[ \beta_2, \left[ \beta_1 T_1, \frac{1}{r} \right] \right] &= \beta_2 \beta_1 T_1 \frac{1}{r} - \beta_2 \frac{1}{r} \beta_1 T_1 - \beta_1 T_1 \frac{1}{r} \beta_2 + \frac{1}{r} \beta_1 T_1 \beta_2 \\ &= \beta_2 \left( \beta_1 T_1 \frac{1}{r} - \beta_1 T_1 \frac{1}{r} \right) - \beta_2 \left( \frac{1}{r} \beta_1 T_1 - \frac{1}{r} \beta_1 T_1 \right) = 0. \end{aligned}$$

L'opérateur  $[\beta_1 T_1, \frac{1}{r}]$  est bien pair par rapport à  $\beta_2$ . Les résultats sont transposables à la particule 2 par permutation d'indices. On retiendra que le hamiltonien transformé au premier ordre en  $1/m$  n'est pas diagonal. C'est un résultat rassurant dans la mesure où le hamiltonien de Breit-Pauli ne contient aucun terme du premier ordre.

\* **Pour le second ordre en  $1/m$** , il faut appliquer la même procédure à tous les opérateurs de la formule (2.43) :

$$\begin{aligned} H_B^{FW(2)} &= \frac{1}{(2ic^2)^2} \left( -i\hbar[\dot{T}_1, H_B] - i\hbar[\dot{T}_2, H_B] - \frac{1}{2} \{(\beta_1 T_1)^2, H_B\} - \{(\beta_1 T_1)(\beta_2 T_2), H_B\} \right. \\ &\quad \left. - \frac{1}{2} \{(\beta_2 T_2)^2, H_B\} + (\beta_1 T_1 + \beta_2 T_2) H_B (\beta_1 T_1 + \beta_2 T_2) \right). \end{aligned} \quad (2.48)$$

En prenant soin de bien séparer  $V$  et  $B_0$  dans l'expression précédente on obtient les résultats suivants :

	$\{(\beta_1 T_1)^2, V\}$	$\{(\beta_2 T_2)^2, V\}$	$\{(\beta_1 T_1)^2, B_0\}$	$\{(\beta_2 T_2)^2, B_0\}$
$\beta_1$	$P$	$P$	$I$	$I$
$\beta_2$	$P$	$P$	$I$	$I$
	$\{(\beta_1 T_1)(\beta_2 T_2), V\}$	$\{(\beta_2 T_2)(\beta_1 T_1), V\}$	$\{(\beta_1 T_1)(\beta_2 T_2), B_0\}$	$\{(\beta_2 T_2)(\beta_1 T_1), B_0\}$
$\beta_1$	$I$	$I$	$P$	$P$
$\beta_2$	$I$	$I$	$P$	$P$
	$(\beta_1 T_1)V(\beta_2 T_2)$	$(\beta_2 T_2)V(\beta_1 T_1)$	$(\beta_1 T_1)B_0(\beta_2 T_2)$	$(\beta_2 T_2)B_0(\beta_1 T_1)$
$\beta_1$	$I$	$I$	$P$	$P$
$\beta_2$	$I$	$I$	$P$	$P$
	$(\beta_1 T_1)V(\beta_1 T_1)$	$(\beta_2 T_2)V(\beta_2 T_2)$	$(\beta_1 T_1)B_0(\beta_1 T_1)$	$(\beta_2 T_2)B_0(\beta_2 T_2)$
$\beta_1$	$P$	$P$	$I$	$I$
$\beta_2$	$P$	$P$	$I$	$I$
	$[\dot{T}_1, V]$	$[\dot{T}_2, V]$	$[\dot{T}_1, B_0]$	$[\dot{T}_2, B_0]$
$\beta_1$	$I$	$P$	$P$	$I$
$\beta_2$	$P$	$I$	$I$	$P$

Remarques :

- On ne doit conserver dans le tableau ci-dessus que les termes doublement pairs marqués ( $P$   $P$ ). Dans la formule (2.48) les opérateurs  $[\dot{T}_1, H_B]$  et  $[\dot{T}_2, H_B]$  sont des termes dépendant du temps provenant de l'aspect temporellement variable de la TFW. Ils ne sont cependant pas pris en compte car aucun ne remplit la condition de double parité. Il n'y a donc, a priori, pas de modification notable du hamiltonien du second ordre en  $1/m$  par la présence du champ externe.
- Parmi les termes ( $P$   $P$ ), certains peuvent être regroupés. En tenant compte des facteurs numériques on peut écrire :

$$-\frac{1}{2} \{(\beta_1 T_1)^2, V\} + (\beta_1 T_1)V(\beta_1 T_1) = -\frac{1}{2} [(\beta_1 T_1), [(\beta_1 T_1), V]].$$

Cette transformation opère aussi pour la particule 2.

Ainsi on écrira le hamiltonien transformé diagonal du second ordre en  $1/m$  selon :

$$H_B^{FW(2)} = -\frac{1}{m^2(2ic^2)^2} \left( \frac{1}{2} [(\beta_1 T_1), [(\beta_1 T_1), V]] + (\beta_1 T_1) B_0 (\beta_2 T_2) + (\beta_2 T_2) B_0 (\beta_1 T_1) \right. \\ \left. + \frac{1}{2} [(\beta_2 T_2), [(\beta_2 T_2), V]] - \{(\beta_1 T_1)(\beta_2 T_2), B_0\} \right). \quad (2.49)$$

\* Enfin pour le **troisième ordre** en  $1/m$  on forme deux types de tableau. On rappelle que le hamiltonien  $H_B^{FW(3)}$  est donné par :

$$H_B^{FW(3)} = \frac{1}{m^3(2ic^2)^3} ((2.44) + (2.45) + (2.46)).$$

Les formules (2.44) et (2.45) correspondent aux éléments  $AH_B B^*$  et  $BH_B A^*$ . Ils sont rangés dans le même tableau car ils comprennent des termes constitués des mêmes opérateurs mais placés différemment, par exemple  $(\beta_1 T_1) V \dot{T}_1$  et  $\dot{T}_1 V (\beta_1 T_1)$ . Les calculs de commutation avec  $\beta_1$  et  $\beta_2$  sont cependant identiques pour les deux. Nous n'avons exposé que les éléments de  $AH_B B^*$  dans le tableau suivant :

	$(\beta_1 T_1) V \dot{T}_1$	$(\beta_2 T_2) V \dot{T}_2$	$(\beta_1 T_1) B_0 \dot{T}_1$	$(\beta_2 T_2) B_0 \dot{T}_2$
$\beta_1$	$P$	$P$	$I$	$I$
$\beta_2$	$P$	$P$	$I$	$I$
	$(\beta_1 T_1) V \dot{T}_2$	$(\beta_2 T_2) V \dot{T}_1$	$(\beta_1 T_1) B_0 \dot{T}_2$	$(\beta_2 T_2) B_0 \dot{T}_1$
$\beta_1$	$I$	$I$	$P$	$P$
$\beta_2$	$I$	$I$	$P$	$P$
	$(\beta_1 T_1) V (\beta_1 T_1)^2$	$(\beta_2 T_2) V (\beta_2 T_2)^2$	$(\beta_1 T_1) B_0 (\beta_1 T_1)^2$	$(\beta_2 T_2) B_0 (\beta_2 T_2)^2$
$\beta_1$	$I$	$P$	$P$	$I$
$\beta_2$	$P$	$I$	$I$	$P$
	$(\beta_1 T_1) V \dot{T}_2^2$	$(\beta_2 T_2) V \dot{T}_1^2$	$(\beta_1 T_1) B_0 \dot{T}_1^2$	$(\beta_2 T_2) B_0 \dot{T}_2^2$
$\beta_1$	$I$	$P$	$P$	$I$
$\beta_2$	$P$	$I$	$I$	$P$
	$(\beta_1 T_1) V (\beta_1 T_1) (\beta_2 T_2)$	$(\beta_2 T_2) V (\beta_1 T_1) (\beta_2 T_2)$	$(\beta_1 T_1) B_0 (\beta_1 T_1) (\beta_2 T_2)$	$(\beta_2 T_2) B_0 (\beta_1 T_1) (\beta_2 T_2)$
$\beta_1$	$P$	$I$	$I$	$P$
$\beta_2$	$I$	$P$	$P$	$I$

Les éléments doublement pairs de (2.44) et (2.45) sont :

$$[(2.44) + (2.45)]_{PP} = \frac{1}{m^3(2ic^2)^3} \left( -\hbar(\beta_1 T_1) V \dot{T}_1 - \hbar(\beta_2 T_2) V \dot{T}_2 - \hbar(\beta_1 T_1) B_0 \dot{T}_2 - \hbar(\beta_2 T_2) B_0 \dot{T}_1 \right. \\ \left. - \hbar \dot{T}_1 V (\beta_1 T_1) - \hbar \dot{T}_2 V (\beta_2 T_2) - \hbar \dot{T}_2 B_0 (\beta_1 T_1) - \hbar \dot{T}_1 B_0 (\beta_2 T_2) \right). \quad (2.50)$$

Le deuxième tableau contient les éléments de (2.46) représentés par l'opérateur  $CH_B + H_B C^*$  :

	$[\beta_1(T_1)^3, V]$	$[\beta_2(T_2)^3, V]$	$[\beta_1(T_1)^3, B_0]$	$[\beta_2(T_2)^3, B_0]$
$\beta_1$	$I$	$P$	$P$	$I$
$\beta_2$	$P$	$I$	$I$	$P$
	$\beta_1\{[T_1, \dot{T}_1], V\}$	$\beta_2\{[T_2, \dot{T}_2], V\}$	$\beta_1\{[T_1, \dot{T}_1], B_0\}$	$\beta_2\{[T_2, \dot{T}_2], B_0\}$
$\beta_1$	$P$	$P$	$I$	$I$
$\beta_2$	$P$	$P$	$I$	$I$
	$\{\beta_1 \ddot{T}_1, V\}$	$\{\beta_2 \ddot{T}_2, V\}$	$\{\beta_1 \ddot{T}_1, B_0\}$	$\{\beta_2 \ddot{T}_2, B_0\}$
$\beta_1$	$I$	$P$	$P$	$I$
$\beta_2$	$P$	$I$	$I$	$P$
	$(\beta_1 T_1)V(\beta_1 T_1)^2$	$(\beta_2 T_2)V(\beta_2 T_2)^2$	$(\beta_1 T_1)B_0(\beta_1 T_1)^2$	$(\beta_2 T_2)B_0(\beta_2 T_2)^2$
$\beta_1$	$I$	$P$	$P$	$I$
$\beta_2$	$P$	$I$	$I$	$P$
	$\{(\beta_1 T_1)\dot{T}_2, V\}$	$\{\dot{T}_1(\beta_2 T_2), V\}$	$\{(\beta_1 T_1)\dot{T}_2, B_0\}$	$\{\dot{T}_1(\beta_2 T_2), B_0\}$
$\beta_1$	$I$	$I$	$P$	$P$
$\beta_2$	$I$	$I$	$P$	$P$
	$[(\beta_1 T_1)T_2^2, V]$	$[T_1^2(\beta_2 T_2), V]$	$[(\beta_1 T_1)T_2^2, B_0]$	$[T_1^2(\beta_2 T_2), B_0]$
$\beta_1$	$I$	$P$	$P$	$I$
$\beta_2$	$P$	$I$	$I$	$P$

dont les seuls éléments doublement pairs sont :

$$[(2.46)]_{PP} = \frac{1}{m^3(2ic^2)^3} \left( -\frac{\hbar}{2}\beta_1\{[T_1, \dot{T}_1], V\} - \frac{\hbar}{2}\beta_2\{[T_2, \dot{T}_2], V\} + \hbar\{(\beta_1 T_1)\dot{T}_2, B_0\} + \hbar\{\dot{T}_1(\beta_2 T_2), B_0\} \right). \quad (2.51)$$

Ainsi en sommant (2.50) et (2.51) on forme le hamiltonien transformé au troisième ordre en  $1/m$  :

$$\begin{aligned} H_B^{FW(3)} = & \frac{1}{m^3(2ic^2)^3} \left( -\hbar(\beta_1 T_1)V\dot{T}_1 - \hbar(\beta_2 T_2)V\dot{T}_2 - \hbar(\beta_1 T_1)B_0\dot{T}_2 - \hbar(\beta_2 T_2)B_0\dot{T}_1 \right. \\ & - \hbar\dot{T}_1 V(\beta_1 T_1) - \hbar\dot{T}_2 V(\beta_2 T_2) - \hbar\dot{T}_2 B_0(\beta_1 T_1) - \hbar\dot{T}_1 B_0(\beta_2 T_2) \\ & \left. - \frac{\hbar}{2}\beta_1\{[T_1, \dot{T}_1], V\} - \frac{\hbar}{2}\beta_2\{[T_2, \dot{T}_2], V\} + \hbar\{(\beta_1 T_1)\dot{T}_2, B_0\} + \hbar\{\dot{T}_1(\beta_2 T_2), B_0\} \right). \end{aligned} \quad (2.52)$$

On remarque que chaque élément de (2.52) est composé de  $\dot{T}_1$  ou de  $\dot{T}_2$  c'est à dire que le **hamiltonien transformé au troisième ordre ne peut s'obtenir qu'en considérant l'aspect temporel de la TFW**.

## 2.2.4 Analyse et critique de la procédure

On regarde à présent l'apport du champ externe dépendant du temps dans la procédure de transformation. On rappelle qu'une telle particularité se traduit par la présence des dérivées temporelles de l'énergie cinétique  $\dot{T}$  et  $\ddot{T}$  dans l'expression des opérateurs transformés. Les différences entre une TFW "statique" et une TFW "temporelle" se situent dans les points suivants :

$$\text{Statique : } \begin{cases} T = c\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \\ \dot{T} = 0 \\ \ddot{T} = 0 \end{cases} \quad \text{Temporelle : } \begin{cases} T = c\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} - q\mathbf{A}(t)) \\ \dot{T} = qc\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{E}(t) \\ \ddot{T} = qc\boldsymbol{\alpha} \cdot \dot{\mathbf{E}}(t) \end{cases} .$$

Il faut tenir compte de la substitution de l'impulsion  $\mathbf{p}$  par l'impulsion généralisée  $\mathbf{p} - q\mathbf{A}$  et de la présence explicite du champ externe  $\mathbf{E}$  ou de sa dérivée temporelle  $\dot{\mathbf{E}}$ . Nous venons de démontrer que les termes temporels de la TFW mono-électronique apporte une contribution à la transformation du hamiltonien de Breit mais que la condition de double parité impose l'élimination de certains d'entre eux. Ainsi au second ordre en  $1/m$  la présence du terme  $[\dot{T}_i, H_B]$  dans l'opérateur transformé n'est pas pris en compte après diagonalisation et la modification opère uniquement sur l'impulsion généralisée. De la même façon pour les termes du troisième ordre qui contiennent  $\dot{T}$  et  $\ddot{T}$ , la condition de diagonalisation élimine les termes contenant  $\ddot{T}$  et ne conserve que les termes en  $\dot{T}$ . Ces résultats sont résumés dans le tableau suivant :

	<b>Influence du champ externe</b>		<b>Types de modification</b>	
Ordre en $(1/m)$	Opérateurs transformés	Après diagonalisation	Substitution impulsion	Présence explicite du champ $E$
1	Non			
2	Oui	Oui	Oui	Non
3	Oui	Oui	Oui	Oui

Il faut aussi critiquer le type de procédure que nous avons utilisée. Dans la paragraphe "Dans la littérature" de la section (1.2.1) nous avons expliqué que pour développer une TFW à un ordre donné il était important d'obtenir un **hamiltonien transformé exclusivement pair**, c'est à dire entièrement diagonal, et c'est pour cette raison que nous avons choisi la procédure récursive de [12] pour mener l'étude à un électron.

En choisissant de réaliser une TFW temporelle d'un système de deux électrons en interaction à partir des résultats connus du cas monoélectronique nous avons obtenu un hamiltonien transformé contenant des opérateurs pairs et impairs à chaque ordre du développement. Nous avons ensuite négligés les termes qui n'étaient pas doublement pairs :

$$e^{iS_1} e^{iS_2} H_B e^{-iS_1} e^{-iS_2} = \sum_{k=0}^3 \frac{1}{m^k} \left( H_{(P,P)}^{(k)} + \underbrace{H_{(I,P)}^{(k)} + H_{(P,I)}^{(k)} + H_{(I,I)}^{(k)}}_{\text{négligés}} \right).$$

Cette **méthode n'est pas rigoureuse** car nous avons établi au premier chapitre qu'une procédure de diagonalisation qui ne respecte pas la condition exclusive de parité à un ordre donné est susceptible de cacher l'existence d'autres opérateurs. Pour être certain d'obtenir une expression exacte du hamiltonien d'interaction transformé au troisième ordre en  $1/m$  en présence d'un champ externe dépendant du temps, il faut **trouver une autre procédure de diagonalisation**.

Le choix que nous avons fait en section (2.2.1) est cohérent mais peut-être insuffisant. L'opérateur  $e^{iS}$  intervenant dans la transformation unitaire a été choisi et non pas imposé par la condition de diagonalisation. Il faudrait développer une TFW du système de deux électrons en interaction qui puisse

séparer, au préalable et à chaque ordre en  $1/m$ , les hamiltoniens pairs et impairs.

$$e^{iS} (H_1 + H_2 + H_B - \partial_t) e^{-iS} = H_I + H_P.$$

En imposant la nullité de tous les opérateurs non doublement pairs on déterminerait la forme de l'opérateur  $S$  à chaque ordre en  $1/m$ , ce qui permettrait de construire de façon exacte le hamiltonien doublement diagonal :

$$\begin{aligned} H_I &= \sum_{k=0}^3 \frac{1}{m^k} \left( \underbrace{H_{(I,P)}^{(k)}(S_k) + H_{(P,I)}^{(k)}(S_k) + H_{(I,I)}^{(k)}(S_k)} \right) \equiv 0 \\ &\quad \Downarrow \\ &\quad S_k : k = 0, 1, 2, 3 \\ &\quad \Downarrow \\ H_P &= \sum_{k=0}^3 \frac{1}{m^k} H_{(P,P)}^{(k)}(S_k) \\ &= H'_1 + H'_2 + H'_B + \vartheta (m^{-4}). \end{aligned}$$

Cette procédure semble ardue à réaliser car elle doit aussi permettre de retrouver les résultats obtenus dans l'étude à un électron, c'est-à-dire obtenir des expressions identiques pour  $H'_1$  et  $H'_2$  qui correspondent à la TFW mono-électronique.

## 2.3 Forme explicite du hamiltonien au second ordre en $1/m$

« Tada, Tadadada... »

Mangozzz, Album de la maturité.

On se propose à présent de donner la forme explicite du hamiltonien transformé au second ordre en  $1/m$ . L'obtention de cette expression nécessite de longs développements analytiques et on précise en section (2.3.1) les règles et astuces de calculs que nous utilisons. En section (2.3.2) on développe la formule (2.49) pour obtenir le hamiltonien de Breit-Pauli au second ordre en  $1/m$ . Ce long développement est utile pour comprendre, en section (2.4), comment est déterminée la forme explicite du hamiltonien transformé du troisième ordre en  $1/m$ .

### 2.3.1 Règles de calcul et méthodologie

On utilisera au cours des deux prochaines sections les règles suivantes :

- **R1** : La formule de Dirac telle que présentée dans la section (1.1.1) :

$$(\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{A})(\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{B}) = \mathbf{A} \cdot \mathbf{B} + i \boldsymbol{\Sigma} \cdot (\mathbf{A} \wedge \mathbf{B}).$$

- **R2** : Les règles de commutation pour les opérateurs canoniquement conjugués :

$$\begin{cases} [\mathbf{p}_1, \mathbf{r}_{12}] = \mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{r}_{12} - \mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_1 = -3i\hbar \\ [\mathbf{p}_2, \mathbf{r}_{12}] = \mathbf{p}_2 \cdot \mathbf{r}_{12} - \mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_2 = 3i\hbar \end{cases}.$$

où le vecteur  $\mathbf{r}_{12}$  est défini selon  $\mathbf{r}_{12} = (x_1 - x_2)\mathbf{e}_x + (y_1 - y_2)\mathbf{e}_y + (z_1 - z_2)\mathbf{e}_z$ .

- **R3** : Les règles de commutations entre les impulsions et les fonctions  $f(r_{12})$  du module du rayon vecteur  $r_{12} = \|\mathbf{r}_{12}\|$  :

$$\begin{cases} [\mathbf{p}_1, f(r_{12})] = \mathbf{p}_1 f(r_{12}) - f(r_{12}) \mathbf{p}_1 = -i\hbar f'(r_{12}) \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}} \\ [\mathbf{p}_2, f(r_{12})] = \mathbf{p}_2 f(r_{12}) - f(r_{12}) \mathbf{p}_2 = i\hbar f'(r_{12}) \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}} \end{cases} .$$

Par exemple on aura :

$$\begin{aligned} \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} - \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 &= i\hbar \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \\ \mathbf{p}_1 \cdot \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} - \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_1 &= -i\hbar \nabla_1 \frac{r_{12}}{r_{12}^3} = i\hbar \Delta \frac{1}{r_{12}} = -4\pi i\hbar \delta(r_{12}). \end{aligned}$$

- **R4** : L'opérateur moment cinétique  $\mathbf{l}_1 = (\mathbf{r}_{12} \wedge \mathbf{p}_1)$  commute avec toute fonction  $f(r_{12})$  au vu de la règle **R3** :

$$\mathbf{l}_1 f(r_{12}) = \mathbf{r}_{12} \wedge \mathbf{p}_1 f(r_{12}) = \mathbf{r}_{12} \wedge f(r_{12}) \mathbf{p}_1 - \underbrace{\mathbf{r}_{12} \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}}}_{0} i\hbar f' \left( \frac{1}{r_{12}^3} \right) = f(r_{12}) \mathbf{r}_{12} \wedge \mathbf{p}_1 = f(r_{12}) \mathbf{l}_1.$$

On utilisera souvent la relation  $\mathbf{l}_1 \frac{1}{r_{12}^3} = \frac{1}{r_{12}^3} \mathbf{l}_1$ .

- **R5** : En présence d'un champ externe l'impulsion  $\mathbf{p}_i$  doit être remplacée par l'impulsion généralisée  $\mathbf{p}_i - q_i \mathbf{A}$ . Ceci ne modifie pas les relations de commutation impliquant les impulsions  $\mathbf{p}_1$  et  $\mathbf{p}_2$ . En effet ( $q_1 = q_2 = q$ ) :

$$\begin{aligned} (\mathbf{p}_1 - q\mathbf{A}) \cdot (\mathbf{p}_2 - q\mathbf{A}) &= \mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{p}_2 - q\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{A} - q\mathbf{A} \cdot \mathbf{p}_2 + q^2 \mathbf{A}^2 \\ &= \mathbf{p}_2 \cdot \mathbf{p}_1 - q\mathbf{A} \cdot \mathbf{p}_1 + i\hbar q \nabla \mathbf{A} - q\mathbf{p}_2 \cdot \mathbf{A} - i\hbar q \nabla \mathbf{A} + q^2 \mathbf{A}^2 \\ &= (\mathbf{p}_2 - q\mathbf{A}) \cdot (\mathbf{p}_1 - q\mathbf{A}). \end{aligned}$$

- **R6** : Nous serons amené à utiliser les relations de commutation suivantes au cours du développement :

$$\mathbf{R6}_1 : \quad [(\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_2), (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_1)] = i\hbar \mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_1 + i\hbar \mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_2$$

$$\mathbf{R6}_2 : \quad [(\mathbf{p}_2 \cdot \mathbf{r}_{12}), (\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_1)] = i\hbar (\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_1) + i\hbar (\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_2)$$

$$\mathbf{R6}_3 : \quad [(\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_1), (\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_2)] = -i\hbar (\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_2) - i\hbar (\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_1)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{R6}_4 : \quad [(\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_1), (\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_2)] &= -i\hbar (\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{r}_{12}) (\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{p}_1) - i\hbar (\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{r}_{12}) (\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{p}_2) \\ &\quad + i\hbar (\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \boldsymbol{\Sigma}_1) (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_2 + \mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_1). \end{aligned}$$

## Méthodologie

- D'après la règle **R5**, on choisit de développer l'ensemble des termes avec l'expression de  $\mathbf{p}_i$  seul afin de ne pas alourdir les calculs. On remplacera à la fin du développement les impulsions  $\mathbf{p}_i$  par les impulsions généralisées  $\mathbf{p}_i - q\mathbf{A}$ .
- Le hamiltonien d'interaction  $H_B$  est scindé en trois parties  $H_B = V + B_0 = V + G + J$  avec  $V$  l'opérateur coulombien,  $G$  l'opérateur de Gaunt et  $J$  l'opérateur de Jauge :

$$\begin{cases} V = \frac{e^2}{r_{12}} \\ G = -e^2 \frac{\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \boldsymbol{\alpha}_2}{2r_{12}} \\ J = -e^2 \frac{(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{2r_{12}^3} \end{cases} .$$

La transformation de Foldy-Wouthuysen au second ordre en  $1/m$  du hamiltonien de Breit est donnée par l'expression suivante :

$$H_B^{FW} = V - \frac{1}{m^2(2ic^2)^2} \left( \frac{1}{2} [(\beta_1 T_1), [(\beta_1 T_1), V]] + (\beta_1 T_1) B_0 (\beta_2 T_2) + (\beta_2 T_2) B_0 (\beta_1 T_1) + \frac{1}{2} [(\beta_2 T_2), [(\beta_2 T_2), V]] - \{(\beta_1 T_1)(\beta_2 T_2), B_0\} \right) + \vartheta(m^{-3}). \quad (2.53)$$

A l'ordre zéro on retrouve bien l'interaction coulombienne  $V$ . Les termes du second ordre en  $1/m$  sont séparés en trois parties compte tenu des trois opérateurs présents dans le hamiltonien de Breit. Leur calcul est mené en séparant les trois contributions notées  $V^{FW(2)}$ ,  $G^{FW(2)}$  et  $J^{FW(2)}$ . On les regroupera en section (2.3.4) pour obtenir le hamiltonien de Breit-Pauli.

### 2.3.2 Opérateur de Coulomb

La contribution d'ordre deux contenant l'opérateur de Coulomb  $V^{FW(2)}$  s'écrit en remplaçant  $T_1$  et  $T_2$  par leurs expressions respectives :

$$\begin{aligned} V^{FW(2)} &= \frac{-1}{2m^2(2ic^2)^2} \left( [(\beta_1 T_1), [(\beta_1 T_1), V]] + [(\beta_2 T_2), [(\beta_2 T_2), V]] \right) \\ &= \frac{-1}{2m^2(2ic^2)^2} \left( [\beta_1 c(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1), [\beta_1 c(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1), V]] + [\beta_2 c\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{p}_2, [\beta_2 c(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{p}_2), V]] \right). \end{aligned} \quad (2.54)$$

Le calcul du double commutateur est développé en détail pour la particule 1. Pour la particule 2, le raisonnement est similaire mis à part des changements de signe que nous préciserons. Evaluons en premier lieu le commutateur  $[\beta_1 c(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1), V]$  :

$$[\beta_1 c(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1), V] = \beta_1 c \boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1 \frac{e^2}{r_{12}} - \frac{e^2}{r_{12}} \beta_1 c \boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1 = \beta_1 c e^2 \boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} - \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \right) = \beta_1 c e^2 i \hbar \frac{\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3}.$$

Il vient ensuite pour le calcul du double commutateur :

$$\begin{aligned} [(\beta_1 T_1), [(\beta_1 T_1), V]] &= \left[ \beta_1 c(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1), e^2 c i \hbar \beta_1 \frac{(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})}{r_{12}^3} \right] \\ &= i \hbar e^2 c^2 \left( \beta_1 (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) \beta_1 \frac{(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})}{r_{12}^3} - \beta_1 \frac{(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})}{r_{12}^3} \beta_1 (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) \right) \\ &= i \hbar e^2 c^2 \left( -\beta_1^2 (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) \frac{(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})}{r_{12}^3} + \beta_1^2 \frac{(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})}{r_{12}^3} (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) \right) \\ &= -i \hbar e^2 c^2 \left( (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12}) \frac{1}{r_{12}^3} - \frac{1}{r_{12}^3} (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12}) (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) \right). \end{aligned}$$

En utilisant la formule de Dirac  $\mathbf{R}_1$ , l'opérateur moment cinétique  $\mathbf{l}_1 = \mathbf{r}_{12} \wedge \mathbf{p}_1$  et les règles  $\mathbf{R}_3$  et  $\mathbf{R}_4$ , le double commutateur prend la forme donnée par (2.55) :

$$\begin{aligned} [(\beta_1 T_1), [(\beta_1 T_1), V]] &= -i \hbar e^2 c^2 \left( \mathbf{p}_1 \cdot \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} - i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_1 \frac{1}{r_{12}^3} - \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_1 - \frac{i}{r_{12}^3} \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_1 \right) \\ &= -i \hbar e^2 c^2 \left( \mathbf{p}_1 \cdot \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} - \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_1 - i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_1 \frac{1}{r_{12}^3} - \frac{i}{r_{12}^3} \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_1 \right) \\ &= -i \hbar e^2 c^2 \left( -4\pi i \hbar \delta(r_{12}) - \frac{2i}{r_{12}^3} \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_1 \right). \end{aligned} \quad (2.55)$$

En tenant compte du facteur numérique dans (2.54), la contribution de la particule 1 à l'opérateur de Coulomb  $V_1^{FW(2)}$  au deuxième ordre en  $1/m$  est alors :

$$V_1^{FW(2)} = \frac{(i\hbar c^2 e^2)}{2(2ic^2 m)^2} \left( -4\pi i \hbar \delta(r_{12}) - \frac{2i}{r_{12}^3} \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_1 \right) = -\frac{\hbar^2 e^2 \pi}{2m^2 c^2} \delta(r_{12}) - \frac{\hbar e^2}{4m^2 c^2 r_{12}^3} \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_1. \quad (2.56)$$

Pour la particule 2 les modifications de signe s'opèrent aux niveaux suivants :

$$\begin{cases} [\beta_2 c(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{p}_2), V] = -\beta_2 c e^2 i \hbar \frac{\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \\ \mathbf{p}_2 \cdot \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} - \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_2 = 4\pi i \hbar \delta(r_{12}) \end{cases}. \quad (2.57)$$

En permutant les indices dans (2.56) et en tenant compte des changements de signe donnés par (2.57), la contribution  $V_2^{FW(2)}$  de la particule 2 vaut :

$$V_2^{FW(2)} = -\frac{\hbar^2 e^2 \pi}{2m^2 c^2} \delta(r_{12}) + \frac{\hbar e^2}{4m^2 c^2 r_{12}^3} \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_2. \quad (2.58)$$

En sommant (2.56) et (2.58) on obtient pour l'opérateur de Coulomb transformé au deuxième ordre en  $(1/m)$  :

$$V^{FW(2)} = -\frac{\hbar^2 e^2 \pi}{m^2 c^2} \delta(r_{12}) + \frac{\hbar e^2}{4m^2 c^2 r_{12}^3} (\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_2 - \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_1). \quad (2.59)$$

### 2.3.3 Opérateur de Gaunt

La contribution du terme de Gaunt au deuxième ordre en  $1/m$  est composé des quatre éléments suivants :

$$\begin{aligned} G^{FW(2)} &= \frac{1}{m^2 (2ic^2)^2} \left( -\{(\beta_1 T_1)(\beta_2 T_2), G\} + (\beta_1 T_1)G(\beta_2 T_2) + (\beta_2 T_2)G(\beta_1 T_1) \right). \\ &= \frac{\beta_1 \beta_2 e^2 c^2}{2m^2 (2ic^2)^2} \left( (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1)(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{p}_2) \frac{\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \boldsymbol{\alpha}_2}{r_{12}} + \frac{\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \boldsymbol{\alpha}_2}{r_{12}} (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1)(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{p}_2) \right. \\ &\quad \left. + (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) \frac{\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \boldsymbol{\alpha}_2}{r_{12}} (\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{p}_2) + (\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{p}_2) \frac{\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \boldsymbol{\alpha}_2}{r_{12}} (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) \right). \quad (2.60) \end{aligned}$$

On transforme les quatre éléments à l'aide de la formule de Dirac. Le calcul est développé uniquement pour la première expression :

$$\begin{aligned} (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1)(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{p}_2) \frac{\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \boldsymbol{\alpha}_2}{r_{12}} &= (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) (\mathbf{p}_2 \cdot \boldsymbol{\alpha}_1 + i \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot (\mathbf{p}_2 \wedge \boldsymbol{\alpha}_1)) \frac{1}{r_{12}} \\ &= ((\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1)(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_2) + i(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1)(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{p}_2))) \frac{1}{r_{12}} \\ &= (\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{p}_2 + i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot (\mathbf{p}_1 \wedge \mathbf{p}_2) + i \mathbf{p}_1 \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{p}_2) - \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot (\mathbf{p}_1 \wedge (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{p}_2))) \frac{1}{r_{12}} \\ &= (\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{p}_2 + i(\boldsymbol{\Sigma}_1 - \boldsymbol{\Sigma}_2) \cdot (\mathbf{p}_1 \wedge \mathbf{p}_2) - (\boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{p}_2)) \frac{1}{r_{12}}. \end{aligned}$$

De façon identique on obtient pour les trois autres parties :

$$\begin{aligned} \frac{\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \boldsymbol{\alpha}_2}{r_{12}} (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1)(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{p}_2) &= \frac{1}{r_{12}} (\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{p}_2 - i(\boldsymbol{\Sigma}_1 - \boldsymbol{\Sigma}_2) \cdot (\mathbf{p}_1 \wedge \mathbf{p}_2) - (\boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{p}_2)) \\ (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) \frac{\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \boldsymbol{\alpha}_2}{r_{12}} (\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{p}_2) &= \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \cdot \mathbf{p}_2 + i(\boldsymbol{\Sigma}_1 + \boldsymbol{\Sigma}_2) \cdot \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \wedge \mathbf{p}_2 \right) + \left( \boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \right) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{p}_2) \right) \\ (\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{p}_2) \frac{\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \boldsymbol{\alpha}_2}{r_{12}} (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) &= \left( \mathbf{p}_2 \frac{1}{r_{12}} \cdot \mathbf{p}_1 + i(\boldsymbol{\Sigma}_1 + \boldsymbol{\Sigma}_2) \cdot \left( \mathbf{p}_2 \frac{1}{r_{12}} \wedge \mathbf{p}_1 \right) + \left( \boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{p}_2 \frac{1}{r_{12}} \right) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1) \right). \end{aligned}$$

Dans les quatre dernières expressions on peut distinguer **trois groupes d'éléments différents** :

- Le premier groupe est composé de produits scalaires impliquant les opérateurs impulsions dans lequel le spin n'apparaît pas. Nous l'appellerons groupe de **Gaunt non-spin** noté  $G_{ns}$ .
- Le second groupe contient les opérateurs  $\Sigma_1$  ou  $\Sigma_2$  et les opérateurs d'impulsion. Il correspond aux éléments de couplage spin-autre-orbite comme nous le verrons plus tard. Nous l'appellerons groupe de **Gaunt spin-autre-orbite** noté  $G_{sao}$ .
- Enfin le dernier groupe est composé d'éléments contenant  $\Sigma_1$  et  $\Sigma_2$  impliquant un couplage entre les spins. Nous l'appellerons groupe de **Gaunt spin-spin** noté  $G_{ss}$ .

La suite du développement se réalise en calculant séparément  $G_{ns}$ ,  $G_{sao}$  et  $G_{ss}$ . Le premier groupe  $G_{ns}$  est composé des termes suivants :

$$G_{ns} = \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{p}_2 + \mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{p}_2 \frac{1}{r_{12}} + \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \cdot \mathbf{p}_2 + \mathbf{p}_2 \frac{1}{r_{12}} \cdot \mathbf{p}_1. \quad (2.61)$$

On affine l'expression (2.61) en faisant apparaître  $\frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{p}_2$  pour chaque contribution. Par exemple le deuxième terme de (2.61) se transforme à l'aide de la règle  $\mathbf{R}_3$  :

$$\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{p}_2 \frac{1}{r_{12}} = \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_2 - \mathbf{p}_1 i\hbar \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} = \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{p}_2 + i\hbar \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_2 - i\hbar \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_1 - \hbar^2 4\pi\delta(r_{12}).$$

On réalise la même opération pour le troisième et quatrième terme :

$$\begin{cases} \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \cdot \mathbf{p}_2 = \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{p}_2 + i\hbar \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_2 \\ \mathbf{p}_2 \frac{1}{r_{12}} \cdot \mathbf{p}_1 = \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_2 \cdot \mathbf{p}_1 - i\hbar \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_1 \end{cases} .$$

On obtient alors pour le premier groupe  $G_{ns}$  la formule (2.62) que nous utiliserons plus tard :

$$G_{ns} = \frac{4\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{p}_2}{r_{12}} + 2i\hbar \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_2 - 2i\hbar \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_1 - \hbar^2 4\pi\delta(r_{12}). \quad (2.62)$$

Le second groupe  $G_{sao}$  est aussi composé de quatre termes :

$$\begin{aligned} G_{sao} &= i(\Sigma_1 - \Sigma_2) \cdot (\mathbf{p}_1 \wedge \mathbf{p}_2) \frac{1}{r_{12}} - i \frac{1}{r_{12}} (\Sigma_1 - \Sigma_2) \cdot (\mathbf{p}_1 \wedge \mathbf{p}_2) \\ &\quad + i(\Sigma_1 + \Sigma_2) \cdot \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \wedge \mathbf{p}_2 \right) + i(\Sigma_1 + \Sigma_2) \cdot \left( \mathbf{p}_2 \frac{1}{r_{12}} \wedge \mathbf{p}_1 \right). \end{aligned} \quad (2.63)$$

Chacun des quatre termes de (2.63) est transformé à l'aide de la règle de calcul  $\mathbf{R}_3$  :

$$\begin{aligned} i(\Sigma_1 - \Sigma_2) \cdot \left( \mathbf{p}_1 \wedge \mathbf{p}_2 \frac{1}{r_{12}} \right) &= i(\Sigma_1 - \Sigma_2) \cdot \left( \mathbf{p}_1 \wedge \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_2 \right) + i(\Sigma_1 - \Sigma_2) \cdot (-i\hbar) \left( \mathbf{p}_1 \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) \\ -i \frac{1}{r_{12}} (\Sigma_1 - \Sigma_2) \cdot (\mathbf{p}_1 \wedge \mathbf{p}_2) &= -i(\Sigma_1 - \Sigma_2) \cdot \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \wedge \mathbf{p}_2 \right) - i(\Sigma_1 - \Sigma_2) \cdot (-i\hbar) \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \wedge \mathbf{p}_2 \right) \\ +i(\Sigma_1 + \Sigma_2) \cdot \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \wedge \mathbf{p}_2 \right) &= i(\Sigma_1 + \Sigma_2) \cdot \left( \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \wedge \mathbf{p}_2 \right) + i(\Sigma_1 + \Sigma_2) \cdot (i\hbar) \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \wedge \mathbf{p}_2 \right) \\ i(\Sigma_1 + \Sigma_2) \cdot \left( \mathbf{p}_2 \frac{1}{r_{12}} \wedge \mathbf{p}_1 \right) &= i(\Sigma_1 + \Sigma_2) \cdot \left( \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_2 \wedge \mathbf{p}_1 \right) - i(\Sigma_1 + \Sigma_2) \cdot (i\hbar) \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \wedge \mathbf{p}_1 \right). \end{aligned}$$

On peut faire apparaître les opérateurs moments cinétiques  $\mathbf{l}_i = (\mathbf{r}_{12} \wedge \mathbf{p}_i)$  et en sommant les quatre dernières équations, les éléments contenant les produits vectoriels entre opérateurs d'impulsion s'annulent. Il reste alors, tenant compte du fait que  $\mathbf{l}_i$  commute avec  $\frac{1}{r_{12}^3}$  (règle  $\mathbf{R}_4$ ), l'expression suivante :

$$G_{sao} = \frac{i\hbar}{r_{12}^3} ((\boldsymbol{\Sigma}_1 - \boldsymbol{\Sigma}_2) \cdot (\mathbf{l}_1 + \mathbf{l}_2) + (\boldsymbol{\Sigma}_1 + \boldsymbol{\Sigma}_2) \cdot (\mathbf{l}_2 - \mathbf{l}_1)) = \frac{2\hbar}{r_{12}^3} (\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_1 - \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_2). \quad (2.64)$$

Il s'agit bien du terme spin-autre-orbite où il apparaît un couplage entre le moment cinétique de spin d'une particule avec le moment cinétique orbital de l'autre particule.

Intéressons nous maintenant au troisième et dernier groupe  $G_{ss}$  qui comprend les interactions entre spins. Les quatre contributions sont rassemblées dans l'expression (2.65) et numérotées de (1) à (4) :

$$\begin{aligned} G_{ss} = & \underbrace{- (\boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{p}_2)}_{(1)} \frac{1}{r_{12}} - \frac{1}{r_{12}} \underbrace{(\boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{p}_2)}_{(2)} \\ & + \underbrace{\left( \boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \right) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{p}_2)}_{(3)} + \underbrace{\left( \boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{p}_2 \frac{1}{r_{12}} \right) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1)}_{(4)}. \end{aligned} \quad (2.65)$$

On transforme chaque terme de (2.65) à l'aide de la relation vectorielle suivante :

$$(\mathbf{A} \wedge \mathbf{B}) \cdot (\mathbf{C} \wedge \mathbf{D}) = (\mathbf{A} \cdot \mathbf{C})(\mathbf{B} \cdot \mathbf{D}) - (\mathbf{A} \cdot \mathbf{D})(\mathbf{C} \cdot \mathbf{B}), \quad (2.66)$$

ce qui donne :

$$\begin{aligned} (1) &= -(\boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{p}_2) \frac{1}{r_{12}} = -(\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\Sigma}_2)(\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{p}_2) \frac{1}{r_{12}} + (\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{p}_2)(\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{p}_1) \frac{1}{r_{12}} \\ (2) &= -\frac{1}{r_{12}} (\boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{p}_2) = -\frac{1}{r_{12}} (\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\Sigma}_2)(\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{p}_2) + \frac{1}{r_{12}} (\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{p}_2)(\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{p}_1) \\ (3) &= \left( \boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \right) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{p}_2) = (\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\Sigma}_2) \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \cdot \mathbf{p}_2 \right) - \left( \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \right) (\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{p}_2) \\ (4) &= \left( \boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{p}_2 \frac{1}{r_{12}} \right) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1) = (\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \boldsymbol{\Sigma}_1) \left( \mathbf{p}_2 \frac{1}{r_{12}} \cdot \mathbf{p}_1 \right) - (\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{p}_2) \frac{1}{r_{12}} (\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{p}_1). \end{aligned}$$

On voit que chaque terme donne deux contributions. La première contribution est appelée "termes de droite" car ils sont tous placés à l'extrémité droite de la ligne de calcul. La seconde, impliquant le couplage  $(\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \boldsymbol{\Sigma}_1)$  est appelée "termes de gauche". En tenant compte que  $\mathbf{p}_2 \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} = \mathbf{p}_1 \mathbf{p}_2 \frac{1}{r_{12}}$ , on regroupe tous les "termes de gauche" notés  $\left( \sum_{k=1}^4 (k) \right)_G$  que l'on transforme avec la règle  $\mathbf{R}_3$  :

$$\begin{aligned} \left( \sum_{k=1}^4 (k) \right)_G &= (\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \boldsymbol{\Sigma}_1) \left( \mathbf{p}_2 \frac{1}{r_{12}} \cdot \mathbf{p}_1 - \mathbf{p}_2 \cdot \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} - \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{p}_2 + \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \cdot \mathbf{p}_2 \right) \\ &= (\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \boldsymbol{\Sigma}_1) \left( \mathbf{p}_2 \cdot \left( \frac{1}{r_{12}} \cdot \mathbf{p}_1 - \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \right) - \left( \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 - \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \right) \cdot \mathbf{p}_2 \right) \\ &= (\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \boldsymbol{\Sigma}_1) \left( \mathbf{p}_2 \cdot \left( i\hbar \nabla_1 \frac{1}{r_{12}} \right) - \left( i\hbar \nabla_1 \frac{1}{r_{12}} \right) \cdot \mathbf{p}_2 \right) \\ &= (\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \boldsymbol{\Sigma}_1) \left( -i\hbar \nabla_2 i\hbar \nabla_1 \frac{1}{r_{12}} \right). \end{aligned} \quad (2.67)$$

On réalise la même opération pour les termes de droite notés  $\left(\sum_{k=1}^4(k)\right)_D$  :

$$\begin{aligned}
\left(\sum_{k=1}^4(k)\right)_D &= (\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{p}_2) \cdot \left(\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \left(\mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} - \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1\right)\right) - \left(\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \left(\mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} - \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1\right)\right) (\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{p}_2) \\
&= (\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{p}_2) \left(\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot i\hbar \nabla_1 \frac{1}{r_{12}}\right) - \left(\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot i\hbar \nabla_1 \frac{1}{r_{12}}\right) (\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{p}_2) \\
&= (\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot i\hbar \nabla_2)(\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot i\hbar \nabla_1) \frac{1}{r_{12}}.
\end{aligned} \tag{2.68}$$

En sommant (2.67) et (2.68) on obtient  $G_{ss}$  la contribution du terme de Gaunt à l'interaction spin-spin.

$$\begin{aligned}
G_{ss} &= (\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \boldsymbol{\Sigma}_1)(-i\hbar \nabla_2 i\hbar \nabla_1 \frac{1}{r_{12}}) + (\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot i\hbar \nabla_2)(\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot i\hbar \nabla_1) \frac{1}{r_{12}} \\
&= (\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \boldsymbol{\Sigma}_1) \hbar^2 \Delta \frac{1}{r_{12}} + (\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot i\hbar \nabla_2)(\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot i\hbar \nabla_1) \frac{1}{r_{12}}.
\end{aligned} \tag{2.69}$$

### 2.3.4 Opérateur de Jauge

Le développement  $J^{FW(2)}$  de l'opérateur transformé de jauge fournit les quatre termes suivants numérotés de (1) à (4) :

$$\begin{aligned}
J^{FW(2)} &= \frac{1}{m^2(2ic^2)^2} \left( -\{(\beta_1 T_1)(\beta_2 T_2), J\} + (\beta_1 T_1)J(\beta_2 T_2) + (\beta_2 T_2)J(\beta_1 T_1) \right) \\
&= \frac{\beta_1 \beta_2 e^2 c^2}{2m^2(2ic^2)^2} \left( \underbrace{(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1)(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{p}_2) \frac{(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{r_{12}^3}}_{(1)} + \underbrace{\frac{(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{r_{12}^3} (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1)(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{p}_2)}_{(2)} \right. \\
&\quad \left. + \underbrace{(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) \frac{(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{r_{12}^3} (\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{p}_2)}_{(3)} + \underbrace{(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{p}_2) \frac{(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{r_{12}^3} (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1)}_{(4)} \right).
\end{aligned}$$

Comme pour les éléments de l'opérateur de Gaunt on utilise la relation de Dirac pour transformer les quatre éléments. On s'intéresse d'abord au terme (1). Pour parvenir à utiliser l'identité de Dirac, il faut pouvoir permuter  $(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{p}_2)$  et  $(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})$ . Ces deux termes ne commutent pas car  $\mathbf{p}_2$  ne commute pas avec  $\mathbf{r}_{12}$ . La relation de commutation est la suivante :

$$(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{p}_2)(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12}) = i\hbar(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \boldsymbol{\alpha}_2) + (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{p}_2).$$

Cette dernière a été prouvée en écrivant les produits scalaires composante par composante. On développe alors :

$$\begin{aligned}
(1) &= (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1)(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{p}_2)(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12}) \\
&= (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1)(i\hbar(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \boldsymbol{\alpha}_2) + (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{p}_2))(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12}) \\
&= \underbrace{(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) i\hbar(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \boldsymbol{\alpha}_2)(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}_{(1a)} + \underbrace{(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1)(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{p}_2)(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}_{(1b)}.
\end{aligned}$$

Pour la première contribution (1a) il vient :

$$\begin{aligned}
(1a) &= i\hbar(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1)(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \boldsymbol{\alpha}_2)(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12}) \\
&= i\hbar(\mathbf{p}_1 \cdot \boldsymbol{\alpha}_2 + i\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot (\mathbf{p}_1 \wedge \boldsymbol{\alpha}_2))(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12}) \\
&= i\hbar((\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{p}_1)(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12}) + i(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1))(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})) \\
&= i\hbar(\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{r}_{12} - i(\boldsymbol{\Sigma}_2 + \boldsymbol{\Sigma}_1) \cdot \mathbf{l}_1 - (\boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1) \cdot (\mathbf{r}_{12} \wedge \boldsymbol{\Sigma}_2)).
\end{aligned}$$

Pour la deuxième contribution (1b), on utilise l'identité de Dirac pour 1 et 2 puis on distribue :

$$\begin{aligned}
(1b) &= (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1)(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{p}_2)(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12}) \\
&= (\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{r}_{12} + i\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot (\mathbf{p}_1 \wedge \mathbf{r}_{12}))(\mathbf{p}_2 \cdot \mathbf{r}_{12} + i\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot (\mathbf{p}_2 \wedge \mathbf{r}_{12})) \\
&= (\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\mathbf{p}_2 \cdot \mathbf{r}_{12}) - (\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})i\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_2 - i\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_1(\mathbf{p}_2 \cdot \mathbf{r}_{12}) - \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot (\mathbf{p}_1 \wedge \mathbf{r}_{12})\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot (\mathbf{p}_2 \wedge \mathbf{r}_{12}).
\end{aligned}$$

En réunissant les deux contributions on obtient finalement pour le premier terme de l'opérateur de Jauge :

$$\begin{aligned}
(1) &= (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1)(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{p}_2)(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})\frac{1}{r_{12}^3} \\
&= (i\hbar(\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{r}_{12} - i(\boldsymbol{\Sigma}_2 + \boldsymbol{\Sigma}_1) \cdot \mathbf{l}_1 - (\boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1) \cdot (\mathbf{r}_{12} \wedge \boldsymbol{\Sigma}_2)) + (\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\mathbf{p}_2 \cdot \mathbf{r}_{12}) \\
&\quad - (\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})i\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_2 - i\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_1(\mathbf{p}_2 \cdot \mathbf{r}_{12}) - \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot (\mathbf{p}_1 \wedge \mathbf{r}_{12})\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot (\mathbf{p}_2 \wedge \mathbf{r}_{12}))\frac{1}{r_{12}^3}. \quad (2.70)
\end{aligned}$$

Le second terme, avec l'opérateur  $\frac{1}{r_{12}^3}$  placé devant, se développe de manière similaire. On réalise d'abord l'opération de commutation puis on développe en utilisant l'identité de Dirac :

$$\begin{aligned}
(2) &= \frac{1}{r_{12}^3}(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1)(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{p}_2) \\
&= \frac{1}{r_{12}^3}(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})i\hbar(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \boldsymbol{\alpha}_2)(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{p}_2) + \frac{1}{r_{12}^3}(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1)(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{p}_2) \\
&= \frac{1}{r_{12}^3}(i\hbar(\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_2 + i(\boldsymbol{\Sigma}_2 + \boldsymbol{\Sigma}_1) \cdot \mathbf{l}_2 - (\boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{r}_{12}) \cdot (\mathbf{p}_2 \wedge \boldsymbol{\Sigma}_2)) + (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_1)(\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_2) \\
&\quad + (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_1)i\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_2 + i\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_1(\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_2) - \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot (\mathbf{r}_{12} \wedge \mathbf{p}_1)\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot (\mathbf{r}_{12} \wedge \mathbf{p}_2)). \quad (2.71)
\end{aligned}$$

Les troisième et quatrième termes peuvent être développés directement sans utiliser les relations de commutation :

$$\begin{aligned}
(3) &= (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1)\frac{(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{r_{12}^3}(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{p}_2) \\
&= \left(\mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{r}_{12}\right)(\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_2) + \left(\mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{r}_{12}\right)i\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_2 \\
&\quad - i\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_1 \frac{1}{r_{12}^3}(\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_2) - \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left(\mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}^3} \wedge \mathbf{r}_{12}\right)\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot (\mathbf{r}_{12} \wedge \mathbf{p}_2), \quad (2.72)
\end{aligned}$$

et aussi :

$$\begin{aligned}
(4) &= (\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{p}_2)\frac{(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{r_{12}^3}(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) \\
&= \left(\mathbf{p}_2 \frac{1}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{r}_{12}\right)(\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_1) + \left(\mathbf{p}_2 \frac{1}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{r}_{12}\right)i\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_1 \\
&\quad - i\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_2 \frac{1}{r_{12}^3}(\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_1) - \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \left(\mathbf{p}_2 \frac{1}{r_{12}^3} \wedge \mathbf{r}_{12}\right)\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot (\mathbf{r}_{12} \wedge \mathbf{p}_1). \quad (2.73)
\end{aligned}$$

On retrouve parmi les formules (2.70), (2.71), (2.72) et (2.73) des éléments pouvant former les trois groupes : non-spin, spin-autre-orbite et spin-spin. On regroupe entre eux les termes d'attributs communs pour définir  $J_{ns}$ ,  $J_{sao}$  et  $J_{ss}$ . Le groupe  $J_{ns}$  composé des éléments ne contenant pas d'opérateur de spin contient les termes suivants :

$$\begin{aligned}
J_{ns} &= i\hbar \mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{r}_{12} \frac{1}{r_{12}^3} + (\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\mathbf{p}_2 \cdot \mathbf{r}_{12}) \frac{1}{r_{12}^3} + \frac{1}{r_{12}^3} i\hbar \mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_2 \\
&+ \frac{1}{r_{12}^3} (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_1)(\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_2) + \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{r}_{12} \right) (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_2) + \left( \mathbf{p}_2 \frac{1}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{r}_{12} \right) (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_1).
\end{aligned} \tag{2.74}$$

On transforme les éléments de (2.74) avec la règle **R3** en faisant apparaître  $\frac{1}{r_{12}^3}$  devant les doubles produits scalaires. Par exemple le deuxième terme de (2.74) devient :

$$\begin{aligned}
(\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\mathbf{p}_2 \cdot \mathbf{r}_{12}) \frac{1}{r_{12}^3} &= (\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{r}_{12}) \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_2 \right) + (\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{r}_{12}) 4\pi\hbar\delta(r_{12}) \\
&= \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_1 \right) (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_2) - 4\pi\hbar\delta(r_{12}) \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_2 \right) + (\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{r}_{12}) 4\pi\hbar\delta(r_{12}) \\
&= \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_1 \right) (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_2) = \frac{1}{r_{12}^3} (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_1)(\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_2).
\end{aligned} \tag{2.75}$$

Les deux derniers termes disparaissent car la fonction delta impose  $\mathbf{r}_{12} = 0$ . On applique le même raisonnement aux deux derniers termes de l'équation (2.74) pour obtenir :

$$\left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{r}_{12} \right) (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_2) = \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_1 \right) (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_2) = \frac{1}{r_{12}^3} (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_1)(\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_2) \tag{2.76}$$

$$\left( \mathbf{p}_2 \frac{1}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{r}_{12} \right) (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_1) = \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_2 \right) (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_1) = \frac{1}{r_{12}^3} (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_2)(\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_1). \tag{2.77}$$

Avec (2.75), (2.76) et en transformant (2.77) à l'aide de la règle de commutation **R6<sub>1</sub>** l'équation (2.74) s'écrit :

$$\begin{aligned}
J_{ns} &= 4 \frac{1}{r_{12}^3} (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_1)(\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_2) + i\hbar \mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{r}_{12} \frac{1}{r_{12}^3} + 2i\hbar \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_2 + i\hbar \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_1 \\
&= 4 \frac{1}{r_{12}^3} (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_1)(\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_2) + 2i\hbar \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_2 + 2i\hbar \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_1 + 4\pi\hbar^2\delta(r_{12}).
\end{aligned}$$

On transforme une dernière fois cette expression en remarquant que  $:(\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_1)(\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_2) + i\hbar \mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_2 = (\mathbf{r}_{12} \cdot (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_1)\mathbf{p}_2)$ . Ce qui donne finalement :

$$J_{ns} = 4(\mathbf{r}_{12} \cdot (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_1)\mathbf{p}_2) - 2i\hbar \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_2 + 2i\hbar \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_1 + 4\pi\hbar^2\delta(r_{12}). \tag{2.78}$$

Le groupe  $J_{sao}$  des éléments spin-autre-orbite est composé des termes suivants numérotés de (1) à (10) :

$$\begin{aligned}
J_{sao} = & \underbrace{-i(\boldsymbol{\Sigma}_2 + \boldsymbol{\Sigma}_1)i\hbar \cdot \mathbf{l}_1 \frac{1}{r_{12}^3}}_{(1)} - \underbrace{(\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})i\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_2 \frac{1}{r_{12}^3}}_{(2)} - \underbrace{i\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_1(\mathbf{p}_2 \cdot \mathbf{r}_{12}) \frac{1}{r_{12}^3}}_{(3)} \\
& + \underbrace{\frac{1}{r_{12}^3}i(\boldsymbol{\Sigma}_2 + \boldsymbol{\Sigma}_1)i\hbar \cdot \mathbf{l}_2}_{(4)} + \underbrace{\frac{1}{r_{12}^3}(\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_1)i\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_2}_{(5)} + \underbrace{\frac{1}{r_{12}^3}i\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_1(\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_2)}_{(6)} + \underbrace{\left(\mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{r}_{12}\right) i\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_2}_{(7)} \\
& - \underbrace{i\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_1 \frac{1}{r_{12}^3}(\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_2)}_{(8)} + \underbrace{\left(\mathbf{p}_2 \frac{1}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{r}_{12}\right) i\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_1}_{(9)} - \underbrace{i\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_2 \frac{1}{r_{12}^3}(\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_1)}_{(10)}.
\end{aligned}$$

On voit tout d'abord que (7) et (2) se simplifient ainsi que (6) et (8) en vertu de la règle **R3** et de la commutation du moment cinétique  $\mathbf{l}_i$  avec toute fonction  $f(r_{12})$ . On peut regrouper (3) et (9) à l'aide de la règle de commutation **R6<sub>2</sub>** ainsi que (5) et (10) avec la règle **R6<sub>3</sub>** :

$$\begin{aligned}
(3) + (9) &= i(i\hbar(\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_1) + i\hbar(\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_2)) \frac{1}{r_{12}^3} \\
(5) + (10) &= i(-i\hbar(\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_1) - i\hbar(\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_2)) \frac{1}{r_{12}^3}.
\end{aligned}$$

Le terme  $J_{sao}$  est déterminé avec (1), (4), ((3) + (9)) et ((5) + (10)), ce qui donne :

$$\begin{aligned}
J_{sao} &= \frac{i\hbar}{r_{12}^3} (i(\boldsymbol{\Sigma}_2 + \boldsymbol{\Sigma}_1) \cdot \mathbf{l}_2 - i(\boldsymbol{\Sigma}_2 + \boldsymbol{\Sigma}_1) \cdot \mathbf{l}_1 - i(\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_1) - i(\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_2)) + i(\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_1) + i(\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_2)) \\
&= \frac{i\hbar}{r_{12}^3} (-2i\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_1 + 2i\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_2) \\
&= \frac{2\hbar}{r_{12}^3} (\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_1 - \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_2). \tag{2.79}
\end{aligned}$$

On remarque que la forme de  $J_{sao}$  est identique à celle de  $G_{sao}$  (2.64). Enfin on détermine l'expression du groupe d'interaction spin-spin du terme de Jauge.  $J_{ss}$  est composé des termes suivants numérotés de (1) à (6) :

$$\begin{aligned}
J_{ss} = & \underbrace{-i\hbar(\boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1) \cdot (\mathbf{r}_{12} \wedge \boldsymbol{\Sigma}_2) \frac{1}{r_{12}^3}}_{(1)} - \underbrace{\frac{1}{r_{12}^3} \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_1 \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_2}_{(2)} - \underbrace{\frac{1}{r_{12}^3} \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_1 \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_2}_{(3)} \\
& - \underbrace{\frac{1}{r_{12}^3} i\hbar(\boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{r}_{12}) \cdot (\mathbf{p}_2 \wedge \boldsymbol{\Sigma}_2)}_{(4)} + \underbrace{\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_1 \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_2 \frac{1}{r_{12}^3}}_{(5)} + \underbrace{\frac{1}{r_{12}^3} \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_2 \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_1}_{(6)}.
\end{aligned}$$

On remarque tout d'abord que (3) et (5) se simplifient. Ensuite on voit que (2) et (6) correspondent à la relation de commutation **R6<sub>4</sub>**. On les regroupe et on nomme  $A$ ,  $B$ ,  $C$  et  $D$  les termes obtenus :

$$\begin{aligned}
(2) + (6) &= \frac{-1}{r_{12}^3} [(\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_1), (\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_2)] \\
&= \frac{-1}{r_{12}^3} \left( \underbrace{-i\hbar(\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{p}_1)}_A - \underbrace{i\hbar(\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{p}_2)}_B + \underbrace{i\hbar(\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \boldsymbol{\Sigma}_1)(\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_2 + \mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_1)}_{C+D} \right).
\end{aligned}$$

Les termes (1) et (4) sont transformés à l'aide de la relation vectorielle (2.66) pour obtenir  $E$ ,  $F$ ,  $G$  et  $H$  :

$$\begin{aligned}
(1) &= -i\hbar(\boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1) \cdot (\mathbf{r}_{12} \wedge \boldsymbol{\Sigma}_2) \frac{1}{r_{12}^3} = i\hbar(\boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1) \cdot \left( \boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) \\
&= \underbrace{i\hbar(\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\Sigma}_2) \left( \mathbf{p}_1 \cdot \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right)}_E - \underbrace{i\hbar(\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{p}_1)(\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{r}_{12}) \frac{1}{r_{12}^3}}_F \\
(4) &= -\frac{i\hbar}{r_{12}^3}(\boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{r}_{12}) \cdot (\mathbf{p}_2 \wedge \boldsymbol{\Sigma}_2) = i\hbar \left( \boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{p}_2) \\
&= \underbrace{i\hbar(\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\Sigma}_2) \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_2 \right)}_G - \underbrace{\frac{i\hbar}{r_{12}^3}(\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{p}_2)}_H.
\end{aligned}$$

Avec ces notations, on écrit  $J_{ss} = (A + B + C + D + E + F + G + H)$ . On peut remarquer que  $C$  et  $G$  s'annulent ainsi que  $B$  et  $H$  :

$$\begin{aligned}
G + C &= (\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\Sigma}_2) \left( i\hbar \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_2 \right) - i\hbar(\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \boldsymbol{\Sigma}_1) \frac{1}{r_{12}^3} \mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_2 = 0 \\
B + H &= \frac{1}{r_{12}^3} i\hbar(\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{p}_2) - \frac{i\hbar}{r_{12}^3}(\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \mathbf{p}_2) = 0.
\end{aligned}$$

On regroupe ensuite  $A$  et  $F$  ainsi que  $E$  et  $D$  :

$$\begin{aligned}
A + F &= i\hbar \left( \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) (\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{p}_1) - i\hbar(\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \mathbf{p}_1) \left( \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) \\
&= -\hbar^2(\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \boldsymbol{\nabla}_1)(\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\nabla}_2) \frac{1}{r_{12}} \tag{2.80}
\end{aligned}$$

$$E + D = i\hbar(\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\Sigma}_2) \left( \mathbf{p}_1 \cdot \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} - \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_1 \right) = \hbar(\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\Sigma}_2) \hbar \Delta \left( \frac{1}{r_{12}} \right). \tag{2.81}$$

En regroupant les formules (2.80) et (2.81) on obtient l'expression de  $J_{ss}$  :

$$J_{ss} = \hbar^2(\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\Sigma}_2) \Delta \frac{1}{r_{12}} - \hbar^2(\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \boldsymbol{\nabla}_1)(\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\nabla}_2) \frac{1}{r_{12}}. \tag{2.82}$$

### 2.3.5 Contribution de l'ensemble des termes : le hamiltonien de Breit-Pauli

On peut à présent regrouper la totalité des éléments en tenant compte du facteur numérique de (2.53) et des formules (2.59) provenant de l'opérateur de Coulomb, (2.62), (2.64), (2.69) issues de l'opérateur de Gaunt et (2.78), (2.79) et (2.82) calculées avec le terme de Jauge. On projette sur les composantes électroniques pour chacun des opérateurs avec la substitution  $\boldsymbol{\Sigma}_i \rightarrow \boldsymbol{\sigma}_i$  et  $\beta_i \rightarrow 1$ . On rassemble les termes d'attributs communs. Ainsi dans la partie coulombienne on peut séparer la partie "non-spin"  $V_{ns}$  de la partie "spin-orbite"  $V_{so}$  :

$$\begin{aligned}
V^{FW} &= \left( \frac{e^2}{r_{12}} - \frac{\hbar^2 e^2 \pi}{m^2 c^2} \delta(r_{12}) \right) + \frac{\hbar^2 e^2}{4m^2 c^2 r_{12}^3} (\boldsymbol{\sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_2 - \boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_1) \\
&= V_{ns} + V_{so}.
\end{aligned}$$

On regroupe les termes "non spin" des opérateurs de Gaunt et de Jauge :

$$\begin{aligned}
G_{ns} + J_{ns} &= \frac{e^2 c^2}{m^2 (2ic^2)^2} ((2.62) + (2.78)) \\
&= \frac{e^2 c^2}{m^2 (2ic^2)^2} \left( \frac{4\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{p}_2}{r_{12}} + 2i\hbar \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_2 - 2i\hbar \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_1 - \hbar^2 4\pi \delta(r_{12}) \right. \\
&\quad \left. + 4(\mathbf{r}_{12} \cdot (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_1) \mathbf{p}_2) - 2i\hbar \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_2 + 2i\hbar \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_1 + 4\pi \hbar^2 \delta(r_{12}) \right) \\
&= \frac{e^2 c^2}{2m^2 (2ic^2)^2} \left( \frac{4\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{p}_2}{r_{12}} + 4 \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_1) \mathbf{p}_2 \right) \\
&= -\frac{e^2}{2m^2 c^2} \left( \frac{\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{p}_2}{r_{12}} + \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_1) \mathbf{p}_2 \right).
\end{aligned}$$

Par ailleurs on peut y inclure les éléments du terme de Coulomb  $V_{ns}$  où le spin n'apparaît pas, ce qui donne la quantité  $H_{B(ns)}^{FW}$  :

$$H_{B(ns)}^{FW} = \frac{e^2}{r_{12}} - \frac{\pi \hbar^2 e^2}{m^2 c^2} \delta(r_{12}) - \frac{e^2}{2m^2 c^2} \left( \frac{\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{p}_2}{r_{12}} + \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_1) \mathbf{p}_2 \right). \quad (2.83)$$

On regroupe maintenant le terme du couplage spin-orbite de Coulomb  $V_{so}$  et les termes de spin-autre-orbite de Gaunt (2.64) et de Jauge (2.79) dans la quantité générale  $H_{B(so)}^{FW}$  pour "spin-orbite" :

$$\begin{aligned}
H_{B(so)}^{FW} &= V_{so} + \frac{e^2 c^2}{2m^2 (2ic^2)^2} ((2.64) + (2.79)) \\
&= \frac{\hbar e^2}{4m^2 c^2 r_{12}^3} (\boldsymbol{\sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_2 - \boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_1) + \frac{2}{2m^2 (2ic^2)^2} \frac{2\hbar}{r_{12}^3} (\boldsymbol{\sigma}_2 \cdot \mathbf{l}_1 - \boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \mathbf{l}_2) \\
&= \frac{\hbar e^2}{4m^2 c^2 r_{12}^3} ((\boldsymbol{\sigma}_2 + 2\boldsymbol{\sigma}_1) \cdot \mathbf{l}_2 - (\boldsymbol{\sigma}_1 + 2\boldsymbol{\sigma}_2) \cdot \mathbf{l}_1).
\end{aligned} \quad (2.84)$$

On rassemble pour finir les contributions spin-spin provenant de (2.69) et (2.82) dans l'expression  $H_{B(ss)}^{FW}$  :

$$\begin{aligned}
H_{B(ss)}^{FW} &= \frac{e^2 c^2}{2m^2 (2ic^2)^2} ((2.69) + (2.82)) \\
&= \frac{e^2 c^2}{2m^2 (2ic^2)^2} \left( 2\hbar^2 (\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\sigma}_2) \Delta \frac{1}{r_{12}} - 2\hbar^2 (\boldsymbol{\sigma}_2 \cdot \nabla_1) (\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \nabla_2) \frac{1}{r_{12}} \right) \\
&= -\frac{e^2 \hbar^2}{4m^2 c^2} \left( (\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\sigma}_2) \Delta \frac{1}{r_{12}} - (\boldsymbol{\sigma}_2 \cdot \nabla_1) (\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \nabla_2) \frac{1}{r_{12}} \right).
\end{aligned} \quad (2.85)$$

On peut préciser le terme dans la parenthèse de (2.85). Le premier terme se transforme avec la fonction  $\delta$  et le second à l'aide de l'identité  $(\mathbf{a} \cdot \nabla)(\mathbf{b} \cdot \nabla) \frac{1}{r} = \left( \frac{\mathbf{a} \cdot \mathbf{b}}{r^3} - \frac{3(\mathbf{a} \cdot \mathbf{r})(\mathbf{b} \cdot \mathbf{r})}{r^5} \right)$  :

$$\begin{aligned}
(\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\sigma}_2) \Delta \frac{1}{r_{12}} &= -(\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\sigma}_2) 4\pi \delta(r_{12}) \\
(\boldsymbol{\sigma}_2 \cdot \nabla_1) (\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \nabla_2) \frac{1}{r_{12}} &= \left( \frac{\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\sigma}_2}{r_{12}^3} - \frac{3(\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\sigma}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{r_{12}^5} \right).
\end{aligned}$$

Il faut cependant faire attention dans la dernière formule au cas particulier  $\mathbf{r}_{12} = 0$ . Dans ce cas précis on obtient des singularités sur les trois composantes suivantes :

$$\sigma_{1x} \frac{\partial}{\partial x_1} \sigma_{2x} \frac{\partial}{\partial x_2} + \sigma_{1y} \frac{\partial}{\partial y_1} \sigma_{2y} \frac{\partial}{\partial y_2} + \sigma_{1z} \frac{\partial}{\partial z_1} \sigma_{2z} \frac{\partial}{\partial z_2}. \quad (2.86)$$

On choisit d'utiliser la valeur moyenne avec  $\langle \sigma_{1x}\sigma_{2x} \rangle = \langle \sigma_{1y}\sigma_{2y} \rangle = \langle \sigma_{1z}\sigma_{2z} \rangle = \frac{\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\sigma}_2}{3}$  ce qui donne pour la ligne précédente :

$$(2.86) = \frac{\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\sigma}_2}{3} \Delta \frac{1}{r_{12}} = -\frac{\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\sigma}_2}{3} 4\pi\delta(r_{12}),$$

et le deuxième terme de (2.85) s'écrit :

$$(\boldsymbol{\sigma}_2 \cdot \nabla_1)(\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \nabla_2) \frac{1}{r_{12}} = \left( \frac{\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\sigma}_2}{r_{12}^3} - \frac{3(\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\sigma}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{r_{12}^5} \right) - 4\pi\delta(r_{12}) \frac{\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\sigma}_2}{3}.$$

On aura donc pour la partie d'interaction spin-spin :

$$H_{B(s-s)}^{FW} = -\frac{e^2\hbar^2}{4m^2c^2} \left( -8\pi \frac{\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\sigma}_2}{3} \delta(r_{12}) - \frac{\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\sigma}_2}{r_{12}^3} + \frac{3(\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\sigma}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{r_{12}^5} \right). \quad (2.87)$$

En regroupant (2.83), (2.84) et (2.87) on retrouve bien le hamiltonien de Breit-Pauli présenté dans la section (2.1.3) :

$$\begin{aligned} H_{BP} = & \frac{e^2}{r_{12}} - \frac{\pi\hbar^2e^2}{m^2c^2}\delta(r_{12}) - \frac{e^2}{2m^2c^2} \left( \frac{\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{p}_2}{r_{12}} + \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{p}_1)\mathbf{p}_2 \right) \\ & + \frac{\hbar e^2}{4m^2c^2r_{12}^3} ((\boldsymbol{\sigma}_2 + 2\boldsymbol{\sigma}_1) \cdot \mathbf{l}_2 - (\boldsymbol{\sigma}_1 + 2\boldsymbol{\sigma}_2) \cdot \mathbf{l}_1) \\ & - \frac{e^2\hbar^2}{4m^2c^2} \left( -8\pi \frac{\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\sigma}_2}{3} \delta(r_{12}) - \frac{\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\sigma}_2}{r_{12}^3} + \frac{3(\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\sigma}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{r_{12}^5} \right). \end{aligned} \quad (2.88)$$

Pour terminer le travail et obtenir l'expression du hamiltonien de Breit-Pauli au second ordre en  $1/m$  en présence d'un champ externe, il faut réaliser la substitution dans (2.88) des impulsions  $\mathbf{p}_1$  et  $\mathbf{p}_2$  par les impulsions généralisées  $(\mathbf{p}_1 - q\mathbf{A})$  et  $(\mathbf{p}_2 - q\mathbf{A})$ . On obtient :

$$\begin{aligned} H_{BP} = & \frac{e^2}{r_{12}} - \frac{\pi\hbar^2e^2}{m^2c^2}\delta(r_{12}) - \frac{e^2}{2m^2c^2} \left( \frac{(\mathbf{p}_1 - q\mathbf{A}) \cdot (\mathbf{p}_2 - q\mathbf{A})}{r_{12}} + \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot (\mathbf{r}_{12} \cdot (\mathbf{p}_1 - q\mathbf{A}))(\mathbf{p}_2 - q\mathbf{A}) \right) \\ & + \frac{\hbar e^2}{4m^2c^2} \left( (\boldsymbol{\sigma}_2 + 2\boldsymbol{\sigma}_1) \cdot \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \wedge (\mathbf{p}_2 - q\mathbf{A}) \right) - (\boldsymbol{\sigma}_1 + 2\boldsymbol{\sigma}_2) \cdot \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \wedge (\mathbf{p}_1 - q\mathbf{A}) \right) \right) \\ & - \frac{e^2\hbar^2}{4m^2c^2} \left( -8\pi \frac{\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\sigma}_2}{3} \delta(r_{12}) - \frac{\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\sigma}_2}{r_{12}^3} + \frac{3(\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\sigma}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{r_{12}^5} \right). \end{aligned} \quad (2.89)$$

## 2.4 Forme explicite du hamiltonien au troisième ordre en $1/m$ : influence du champ externe

« Soyons désinvoltes. N'ayons l'air de rien. »

Bertrand Cantat, Noir Désir.

Cette section est consacrée à la transformation du hamiltonien au troisième ordre (2.52) en sa forme explicite. On met en évidence l'**impact du champ électromagnétique externe** qui devient un partenaire à part entière et agit comme un "**troisième corps**" dans les éléments d'interaction du problème à deux électrons. En section (2.4.1) on précise une nouvelle règle due à la présence du champ externe utilisée dans les trois sections suivantes. On étudie en (2.4.5) la forme explicite du hamiltonien perturbé par le champ externe et on évalue son importance par rapport aux éléments du second ordre en  $1/m$ .

### 2.4.1 Prérequis

Le point de départ est le hamiltonien suivant :

$$\begin{aligned}
H_B^{FW(3)} = & \frac{1}{m^3(2ic^2)^3} \left( -\hbar(\beta_1 T_1) V \dot{T}_1 - \hbar(\beta_2 T_2) V \dot{T}_2 - \hbar(\beta_1 T_1) B_0 \dot{T}_2 - \hbar(\beta_2 T_2) B_0 \dot{T}_1 \right. \\
& - \hbar \dot{T}_1 V(\beta_1 T_1) - \hbar \dot{T}_2 V(\beta_2 T_2) - \hbar \dot{T}_2 B_0(\beta_1 T_1) - \hbar \dot{T}_1 B_0(\beta_2 T_2) \\
& \left. - \frac{\hbar}{2} \beta_1 \{[T_1, \dot{T}_1], V\} - \frac{\hbar}{2} \beta_2 \{[T_2, \dot{T}_2], V\} + \hbar \{(\beta_1 T_1) \dot{T}_2, B_0\} + \hbar \{\dot{T}_1(\beta_2 T_2), B_0\} \right).
\end{aligned} \tag{2.90}$$

Tous ces termes sont fonctions de l'énergie cinétique  $T$  et de sa dérivée temporelle  $\dot{T}$ . On rappelle leurs expressions dans le formalisme de Dirac :

$$\begin{cases} T_i = c\alpha_i \cdot \mathbf{p}_i \\ \dot{T}_i = qc\alpha_i \cdot \mathbf{E} \end{cases} .$$

C'est la dérivée temporelle  $\dot{T}$  qui fait apparaître explicitement le champ électrique  $\mathbf{E}$ . C'est un terme nouveau dans le développement analytique et il se peut que le champ électrique ne commute pas avec l'opérateur impulsion. La relation de commutation est la suivante :

$$[\mathbf{p}, \mathbf{E}(r)] = \mathbf{p} \cdot \mathbf{E}(r) - \mathbf{E}(r) \cdot \mathbf{p} = -i\hbar \frac{\partial \mathbf{E}(\mathbf{r})}{\partial r}. \tag{2.91}$$

Les expériences de désaimantation ultra-rapide [8] sont réalisées sur des échantillons de Nickel d'une largeur de quelques nanomètres ( $10^{-9}$  m). Les impulsions laser utilisées sont des impulsions lumineuses femtoseconde ( $10^{-15}$  s) dont la longueur d'onde caractéristique est de l'ordre d'une centaine de nanomètre  $\lambda_{fs} \approx 100$  nm . Dans ce type d'expérience le champ électromagnétique externe est uniforme pour l'ensemble de l'échantillon, on peut considérer que l'équation (2.91) est nulle et que les grandeurs  $\mathbf{E}$  et  $\mathbf{p}$  commutent. En revanche, si nous utilisons des impulsions atto-secondes ( $10^{-18}$  s), la longueur d'onde caractéristique devient de l'ordre du dixième de nanomètre  $\lambda_{atto} \approx 0.1$  nm = 1Å inférieure à la taille de l'échantillon. La relation (2.91) n'est pas nulle et les grandeurs  $\mathbf{E}$  et  $\mathbf{p}$  ne commutent pas !

L'expression du hamiltonien de Breit-Pauli au troisième ordre que nous proposons en section (2.4.5) a été obtenue en supposant que  $\mathbf{E}$  et  $\mathbf{p}$  commutent. Cette expression n'est donc peut-être pas valable dans le régime atto-seconde. On précisera dans les sections (2.4.2), (2.4.3) et (2.4.4) où dans les développements la commutativité de  $\mathbf{E}$  et  $\mathbf{p}$  est utilisée pour faciliter les calculs. Ce changement sera symbolisé par le signe suivant :  $\downarrow *$ .

$$\begin{aligned}
[\mathbf{p}, \mathbf{E}(r)] & \neq 0 \\
& \downarrow * \\
[\mathbf{p}, \mathbf{E}(r)] & = 0.
\end{aligned}$$

La détermination de (2.90) est réalisée en calculant séparément les contributions  $V^{FW(3)}$ ,  $G^{FW(3)}$  et  $J^{FW(3)}$  qui seront regroupées dans la section (2.4.4).

### 2.4.2 Operateur de Coulomb

La partie coulombienne du hamiltonien transformé au troisième ordre est :

$$V^{FW(3)} = \frac{1}{m^3(2ic^2)^3} \left( -\hbar(\beta_1 T_1) V \dot{T}_1 - \hbar \dot{T}_1 V(\beta_1 T_1) - \frac{\hbar}{2} \beta_1 \{[T_1, \dot{T}_1], V\} \right. \\ \left. - \hbar(\beta_2 T_2) V \dot{T}_2 - \hbar \dot{T}_2 V(\beta_2 T_2) - \frac{\hbar}{2} \beta_2 \{[T_2, \dot{T}_2], V\} \right). \quad (2.92)$$

On traite en premier lieu les termes relatifs à l'opérateur coulombien  $V$  pour la particule indiquée 1, les résultats étant transposables par permutation d'indices et de changements de signe que l'on précisera.

On obtient :

$$\begin{aligned} -\hbar(\beta_1 T_1) V \dot{T}_1 &= -\hbar \beta_1 c (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) \frac{e^2}{r_{12}} q c (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{E}) = -\beta_1 \hbar e^2 q c^2 (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) \frac{1}{r_{12}} (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{E}) \\ &= -\beta_1 \hbar e^2 q c^2 \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \cdot \mathbf{E} + i \boldsymbol{\Sigma} \cdot \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \wedge \mathbf{E} \right) \right) \\ -\hbar \dot{T}_1 V(\beta_1 T_1) &= -\hbar q c (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{E}) \frac{e^2}{r_{12}} \beta_1 c (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) = +\beta_1 \hbar e^2 q c^2 (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{E}) \frac{1}{r_{12}} (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) \\ &= +\beta_1 \hbar e^2 q c^2 \left( \mathbf{E} \cdot \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 + i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \mathbf{E} \wedge \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \right) \right) \\ -\frac{\hbar}{2} \beta_1 \{[T_1, \dot{T}_1], V\} &= -\frac{\beta_1 \hbar e^2 q c^2}{2} \left\{ [(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1), (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{E})], \frac{1}{r_{12}} \right\} \\ &= -\frac{\beta_1 \hbar e^2 q c^2}{2} \left\{ \mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{E} - \mathbf{E} \cdot \mathbf{p}_1 + 2i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot (\mathbf{p}_1 \wedge \mathbf{E}), \frac{1}{r_{12}} \right\} \\ &= -\frac{\beta_1 \hbar e^2 q c^2}{2} \left( \mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{E} \frac{1}{r_{12}} - \mathbf{E} \cdot \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} + \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{E} - \frac{1}{r_{12}} \mathbf{E} \cdot \mathbf{p}_1 \right. \\ &\quad \left. + 2i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \wedge \mathbf{E} \right) + 2i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \wedge \mathbf{E} \right) \right). \end{aligned}$$

On sépare les résultats obtenus en deux groupes : les termes où le spin n'intervient pas  $V_{ns}$  et ceux où apparaît un couplage de type spin-orbite  $V_{so}$ . Pour la contribution "non-spin" on obtient :

$$\begin{aligned} V_{n-s} &= \beta_1 \hbar e^2 q c^2 \left( -\mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \cdot \mathbf{E} + \mathbf{E} \cdot \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 - \frac{1}{2} \mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{E} \frac{1}{r_{12}} + \frac{1}{2} \mathbf{E} \cdot \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} - \frac{1}{2r_{12}} \mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{E} + \frac{1}{2r_{12}} \mathbf{E} \cdot \mathbf{p}_1 \right) \\ &= \beta_1 \hbar e^2 q c^2 \left( \mathbf{E} \cdot \left( \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 + \mathbf{p}_1 \frac{1}{2r_{12}} + \frac{1}{2r_{12}} \mathbf{p}_1 \right) + \left( -\mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} - \mathbf{p}_1 \frac{1}{2r_{12}} - \frac{1}{2r_{12}} \mathbf{p}_1 \right) \cdot \mathbf{E} \right) \\ &\downarrow * \\ &= \beta_1 \hbar e^2 q c^2 \mathbf{E} \cdot \left( \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 - \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \right) \\ &= -\beta_1 \hbar e^2 q c^2 \left[ \mathbf{p}_1, \frac{1}{r_{12}} \right] \cdot \mathbf{E}. \end{aligned} \quad (2.93)$$

Et pour celle du spin orbite :

$$\begin{aligned} V_{so} &= \beta_1 \hbar e^2 q c^2 \left( -i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \wedge \mathbf{E} \right) + i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \mathbf{E} \wedge \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \right) - i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \wedge \mathbf{E} \right) - i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \wedge \mathbf{E} \right) \right) \\ &\downarrow * \\ &= -2i \beta_1 \hbar e^2 q c^2 \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \left\{ \mathbf{p}_1, \frac{1}{r_{12}} \right\} \wedge \mathbf{E} \right). \end{aligned} \quad (2.94)$$

En sommant (2.93) et (2.94) la contribution  $V_1^{FW(3)}$  de la particule 1 à l'opérateur transformé de Coulomb au troisième ordre en  $1/m$  s'écrit :

$$V_1^{FW(3)} = \frac{\beta_1 \hbar e^2 q c^2}{m^3 (2ic^2)^3} \left( - \left[ \mathbf{p}_1, \frac{1}{r_{12}} \right] \cdot \mathbf{E} - 2i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \left\{ \mathbf{p}_1, \frac{1}{r_{12}} \right\} \wedge \mathbf{E} \right) \right).$$

La contribution  $V_2^{FW(3)}$  relative à la particule 2 est identique à  $V_1^{FW(3)}$  à condition de substituer 2 à 1. On obtient au final pour l'opérateur de Coulomb :

$$\begin{aligned} V^{FW(3)} = & \frac{\hbar e^2 q c^2}{m^3 (2ic^2)^3} \left( -\beta_1 \left[ \mathbf{p}_1, \frac{1}{r_{12}} \right] \cdot \mathbf{E} - \beta_2 \left[ \mathbf{p}_2, \frac{1}{r_{12}} \right] \cdot \mathbf{E} \right. \\ & \left. - 2i\beta_1 \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \left\{ \mathbf{p}_1, \frac{1}{r_{12}} \right\} \wedge \mathbf{E} \right) - 2i\beta_2 \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \left( \left\{ \mathbf{p}_2, \frac{1}{r_{12}} \right\} \wedge \mathbf{E} \right) \right). \end{aligned} \quad (2.95)$$

### 2.4.3 Opérateur de Gaunt

Le hamiltonien transformé au troisième ordre en  $1/m$  comprenant les termes de l'opérateur de Gaunt est :

$$\begin{aligned} G^{FW(3)} = & \frac{1}{m^3 (2ic^2)^3} \left( -\hbar(\beta_1 T_1) G \dot{T}_2 - \hbar(\beta_2 T_2) G \dot{T}_1 - \hbar \dot{T}_2 G(\beta_1 T_1) \right. \\ & \left. - \hbar \dot{T}_1 G(\beta_2 T_2) + \hbar \{ (\beta_1 T_1) \dot{T}_2, G \} + \hbar \{ \dot{T}_1 (\beta_2 T_2), G \} \right). \end{aligned} \quad (2.96)$$

Comme précédemment on calcule les opérateurs qui contiennent la partie cinétique  $T_1$  relative à la particule 1 et on réalise les transpositions pour la particule 2 avec les changements de signe qui s'imposent. Il suffit de déterminer l'expression des quatre éléments  $-\hbar(\beta_1 T_1) G \dot{T}_2$ ,  $-\hbar \dot{T}_2 G(\beta_1 T_1)$ ,  $\hbar(\beta_1 T_1) \dot{T}_2 G$  et  $\hbar G(\beta_1 T_1) \dot{T}_2$ . On détaille uniquement les calculs pour le premier terme :

$$\begin{aligned} -\hbar(\beta_1 T_1) G \dot{T}_2 &= -\hbar \beta_1 c (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) \frac{-e^2 (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \boldsymbol{\alpha}_2)}{2r_{12}} q c (\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{E}) = \frac{\hbar \beta_1 e^2 q c^2}{2} (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) \frac{(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \boldsymbol{\alpha}_2)}{r_{12}} (\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{E}) \\ &= \frac{\hbar \beta_1 e^2 q c^2}{2} \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \cdot \boldsymbol{\alpha}_2 + i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \wedge \boldsymbol{\alpha}_2 \right) \right) (\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{E}) \\ &= \frac{\hbar \beta_1 e^2 q c^2}{2} \left( (\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{p}_1) \frac{1}{r_{12}} (\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{E}) + i \left( \boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \left( \boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \right) \right) (\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{E}) \right) \\ &= \frac{\hbar \beta_1 e^2 q c^2}{2} \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \cdot \mathbf{E} + i \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \wedge \mathbf{E} \right) + i \left( \boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \right) \cdot \mathbf{E} + i \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot i \left( \boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \right) \wedge \mathbf{E} \right) \\ &= \frac{\hbar \beta_1 e^2 q c^2}{2} \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \cdot \mathbf{E} + i \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \wedge \mathbf{E} \right) + i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \wedge \mathbf{E} \right) + \left( \boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \right) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{E}) \right). \end{aligned} \quad (2.97)$$

On donne directement les résultats pour les trois suivants :

$$\begin{aligned} -\hbar \dot{T}_2 G(\beta_1 T_1) &= -\hbar q c (\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{E}) \frac{-e^2 (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \boldsymbol{\alpha}_2)}{2r_{12}} \beta_1 c (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) = -\frac{\hbar \beta_1 e^2 q c^2}{2} (\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{E}) \frac{(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \boldsymbol{\alpha}_2)}{r_{12}} (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) \\ &= -\frac{\hbar \beta_1 e^2 q c^2}{2} \left( \mathbf{E} \cdot \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 + i \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \left( \mathbf{E} \wedge \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \right) + i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \mathbf{E} \wedge \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \right) + (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{E}) \cdot \left( \boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \right) \right) \end{aligned} \quad (2.98)$$

$$\begin{aligned}
\hbar(\beta_1 T_1) \dot{T}_2 G &= \hbar \beta_1 c (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) q c (\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{E}) \frac{-e^2 (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \boldsymbol{\alpha}_2)}{2 r_{12}} = -\frac{\hbar \beta_1 e^2 q c^2}{2} (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) (\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{E}) \frac{(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \boldsymbol{\alpha}_2)}{r_{12}} \\
&= -\frac{\hbar \beta_1 e^2 q c^2}{2} \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \cdot \mathbf{E} + i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \wedge \mathbf{E} \right) + i \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{E}) - \left( \boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \right) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{E}) \right)
\end{aligned} \tag{2.99}$$

$$\begin{aligned}
\hbar G (\beta_1 T_1) \dot{T}_2 &= \hbar \frac{-e^2 (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \boldsymbol{\alpha}_2)}{2 r_{12}} \beta_1 c (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) q c (\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{E}) = +\frac{\hbar \beta_1 e^2 q c^2}{2} \frac{(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \boldsymbol{\alpha}_2)}{r_{12}} (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) (\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{E}) \\
&= \frac{\hbar \beta_1 e^2 q c^2}{2} \left( \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{E} + i \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \left( \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \wedge \mathbf{E} \right) - i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \wedge \mathbf{E} \right) - \left( \boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \right) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{E}) \right).
\end{aligned} \tag{2.100}$$

Comme dans le calcul de l'hamiltonien au second ordre on obtient, à travers les formules (2.97), (2.98), (2.99) et (2.100) trois groupes différents : les termes de Gaunt non-spin  $G_{ns}$ , les termes de Gaunt du couplage spin-autre-orbite  $G_{sao}$  et les termes de Gaunt couplage spin-spin  $G_{ss}$ . On regroupe l'ensemble des termes de Gaunt "non spin" :

$$\begin{aligned}
G_{ns} &= \frac{\hbar \beta_1 e^2 q c^2}{2} \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \cdot \mathbf{E} - \mathbf{E} \cdot \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 - \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \cdot \mathbf{E} + \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{E} \right) \\
&\downarrow * \\
&= 0.
\end{aligned}$$

La contribution "non-spin" de l'opérateur de Gaunt  $G_{ns}$  est nulle. On s'intéresse à présent aux termes de Gaunt de "spin-autre-orbite"  $G_{sao}$  :

$$\begin{aligned}
G_{sao} &= \frac{\hbar \beta_1 e^2 q c^2}{2} \left( i \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \wedge \mathbf{E} \right) + i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \wedge \mathbf{E} \right) - i \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \left( \mathbf{E} \wedge \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \right) - i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \mathbf{E} \wedge \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \right) \right. \\
&\quad \left. - i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \wedge \mathbf{E} \right) - i \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{E}) + i \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \left( \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \wedge \mathbf{E} \right) - i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \wedge \mathbf{E} \right) \right) \\
&\downarrow * \\
&= \frac{\hbar \beta_1 e^2 q c^2}{2} \left( i \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \left( \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} + \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 + \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} + \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \right) \wedge \mathbf{E} \right) \right. \\
&\quad \left. - i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} + \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 - \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} - \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \right) \wedge \mathbf{E} \right) \right) \\
&= \hbar \beta_1 e^2 q c^2 i \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \left( \left\{ \mathbf{p}_1, \frac{1}{r_{12}} \right\} \wedge \mathbf{E} \right).
\end{aligned} \tag{2.101}$$

On regroupe ensuite les termes de Gaunt  $G_{ss}$  d'interaction spin-spin :

$$\begin{aligned}
G_{s-s} &= \frac{\hbar \beta_1 e^2 q c^2}{2} \left( \left( \boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \right) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{E}) - (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{E}) \cdot \left( \boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \right) \right. \\
&\quad \left. + (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{E}) \cdot \left( \boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \right) - \left( \boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \right) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{E}) \right) \\
&\downarrow * \\
&= \frac{\hbar \beta_1 e^2 q c^2}{2} \left( 2 \left( \boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} - \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \right) \right) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{E}) \right) = \hbar \beta_1 e^2 q c^2 \left( \boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \left[ \mathbf{p}_1, \frac{1}{r_{12}} \right] \right) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{E}) \\
&= i \hbar^2 \beta_1 e^2 q c^2 \left( \boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{E}).
\end{aligned} \tag{2.102}$$

Pour les éléments relatifs à la particule (2) il suffit de permuter les indices (1) et (2) dans les formules (2.101) et (2.102) mais en tenant compte du fait que  $[\mathbf{p}_1, \frac{1}{r_{12}}] = -[\mathbf{p}_2, \frac{1}{r_{12}}]$ , on a une modification du signe pour le terme de couplage spin-spin issu des éléments cinétiques indicés 2. On peut alors donner l'expression du hamiltonien de Gaunt au troisième ordre :

$$G^{FW(3)} = \frac{i\hbar e^2 qc^2}{m^3(2ic^2)^3} \left( \beta_2 \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \left\{ \mathbf{p}_2, \frac{1}{r_{12}} \right\} \wedge \mathbf{E} \right) + \beta_1 \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \left( \left\{ \mathbf{p}_1, \frac{1}{r_{12}} \right\} \wedge \mathbf{E} \right) \right. \\ \left. + \hbar\beta_1 \left( \boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{E}) - \hbar\beta_2 \left( \boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{E}) \right). \quad (2.103)$$

#### 2.4.4 Opérateur de Jauge

Le hamiltonien transformé au troisième ordre en  $1/m$  comprenant les termes de l'opérateur de Jauge est :

$$J^{FW(3)} = \frac{1}{m^3(2ic^2)^3} \left( -\hbar(\beta_1 T_1) J \dot{T}_2 - \hbar(\beta_2 T_2) J \dot{T}_1 - \hbar \dot{T}_2 J(\beta_1 T_1) \right. \\ \left. - \hbar \dot{T}_1 J(\beta_2 T_2) + \hbar \{(\beta_1 T_1) \dot{T}_2, J\} + \hbar \{ \dot{T}_1 (\beta_2 T_2), J \} \right). \quad (2.104)$$

De la même manière que pour l'opérateur de Gaunt, il suffit de déterminer l'expression des quatre éléments  $-\hbar(\beta_1 T_1) J \dot{T}_2$ ,  $-\hbar \dot{T}_2 J(\beta_1 T_1)$ ,  $\hbar(\beta_1 T_1) \dot{T}_2 J$  et  $\hbar J(\beta_1 T_1) \dot{T}_2$ . Le calcul est détaillé uniquement pour le premier élément :

$$-\hbar(\beta_1 T_1) J \dot{T}_2 = -\hbar\beta_1 c (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) (-e^2) \frac{(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{2r_{12}^3} qc (\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{E}) \\ = \frac{\hbar\beta_1 e^2 qc^2}{2} (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12}) \frac{1}{r_{12}^3} (\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12}) (\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{E}) \\ = \frac{\hbar\beta_1 e^2 qc^2}{2} \left( \mathbf{p}_1 \cdot \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} + i\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \mathbf{p}_1 \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) \right) (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{E} + i\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot (\mathbf{r}_{12} \wedge \mathbf{E})) \\ = \frac{\hbar\beta_1 e^2 qc^2}{2} \left( \left( \mathbf{p}_1 \cdot \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{E}) + \left( \mathbf{p}_1 \cdot \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) i\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot (\mathbf{r}_{12} \wedge \mathbf{E}) \right. \\ \left. + i\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \mathbf{p}_1 \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{E}) - \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \mathbf{p}_1 \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot (\mathbf{r}_{12} \wedge \mathbf{E}) \right) \quad (2.105)$$

$$-\hbar \dot{T}_2 J(\beta_1 T_1) = -\hbar qc \boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{E} (-e^2) \frac{(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{2r_{12}^3} \beta_1 c \boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1 \\ = -\frac{\hbar\beta_1 e^2 qc^2}{2} (\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{E}) (\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12}) \frac{1}{r_{12}^3} (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12}) (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) \\ = -\frac{\hbar\beta_1 e^2 qc^2}{2} \left( (\mathbf{E} \cdot \mathbf{r}_{12}) \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_1 \right) + (\mathbf{E} \cdot \mathbf{r}_{12}) i\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \wedge \mathbf{p}_1 \right) \right. \\ \left. + i\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot (\mathbf{E} \wedge \mathbf{r}_{12}) \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_1 \right) - \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot (\mathbf{E} \wedge \mathbf{r}_{12}) \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \wedge \mathbf{p}_1 \right) \right) \quad (2.106)$$

$$\begin{aligned}
\hbar(\beta_1 T_1) \dot{T}_2 J &= \hbar \beta_1 c (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) q c (\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{E}) (-e^2) \frac{(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{2r_{12}^3} \\
&= -\frac{\hbar \beta_1 e^2 q c^2}{2} (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12}) \frac{1}{r_{12}^3} (\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{E}) (\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12}) \\
&= -\frac{\hbar \beta_1 e^2 q c^2}{2} \left( \left( \mathbf{p}_1 \cdot \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) (\mathbf{E} \cdot \mathbf{r}_{12}) + \left( \mathbf{p}_1 \cdot \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) i \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot (\mathbf{E} \wedge \mathbf{r}_{12}) \right. \\
&\quad \left. + i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \mathbf{p}_1 \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) (\mathbf{E} \cdot \mathbf{r}_{12}) - \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \mathbf{p}_1 \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot (\mathbf{E} \wedge \mathbf{r}_{12}) \right)
\end{aligned} \tag{2.107}$$

$$\begin{aligned}
\hbar J(\beta_1 T_1) \dot{T}_2 &= \hbar (-e^2) \frac{(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{2r_{12}^3} \beta_1 c (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) q c (\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{E}) \\
&\downarrow * \\
&= +\frac{\hbar \beta_1 e^2 q c^2}{2} (\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\alpha}_2 \cdot \mathbf{E}) \frac{1}{r_{12}^3} (\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\alpha}_1 \cdot \mathbf{p}_1) \\
&= +\frac{\hbar \beta_1 e^2 q c^2}{2} \left( (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{E}) \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_1 \right) + (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{E}) i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \wedge \mathbf{p}_1 \right) \right. \\
&\quad \left. + i \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot (\mathbf{r}_{12} \wedge \mathbf{E}) \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_1 \right) - \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot (\mathbf{r}_{12} \wedge \mathbf{E}) \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \wedge \mathbf{p}_1 \right) \right).
\end{aligned} \tag{2.108}$$

On regroupe ensuite parmi (2.105), (2.106), (2.107) et (2.108) les termes de Jauge "non spin"  $J_{ns}$ , les termes de Jauge spin-autre-orbite  $J_{sao}$  et les terme de Jauge spin-spin  $J_{ss}$ . La contribution  $J_{ns}$  est composé des opérateurs suivants :

$$\begin{aligned}
J_{ns} &= \frac{\hbar \beta_1 e^2 q c^2}{2} \left( \left( \mathbf{p}_1 \cdot \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{E}) - (\mathbf{E} \cdot \mathbf{r}_{12}) \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_1 \right) - \left( \mathbf{p}_1 \cdot \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) (\mathbf{E} \cdot \mathbf{r}_{12}) + (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{E}) \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_1 \right) \right) \\
&\downarrow * \\
&= 0.
\end{aligned}$$

La contribution  $J_{n-s}$  est donc nulle. L'ensemble des termes  $J_{sao}$  est :

$$\begin{aligned}
J_{sao} &= \frac{\hbar \beta_1 e^2 q c^2}{2} \left( \left( \mathbf{p}_1 \cdot \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) i \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot (\mathbf{r}_{12} \wedge \mathbf{E}) + i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \mathbf{p}_1 \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{E}) \right. \\
&\quad - (\mathbf{E} \cdot \mathbf{r}_{12}) i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \wedge \mathbf{p}_1 \right) - i \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot (\mathbf{E} \wedge \mathbf{r}_{12}) \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_1 \right) \\
&\quad - \left( \mathbf{p}_1 \cdot \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) i \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot (\mathbf{E} \wedge \mathbf{r}_{12}) - i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \mathbf{p}_1 \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) (\mathbf{E} \cdot \mathbf{r}_{12}) \\
&\quad \left. + (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{E}) i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \wedge \mathbf{p}_1 \right) + i \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot (\mathbf{r}_{12} \wedge \mathbf{E}) \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_1 \right) \right). \tag{2.109}
\end{aligned}$$

On regroupe tous les éléments de (2.109) qui contiennent l'opérateur  $\boldsymbol{\Sigma}_1$  :

$$\begin{aligned}
J_{sao}(\boldsymbol{\Sigma}_1) &= \frac{\hbar \beta_1 e^2 q c^2}{2} \underbrace{\left( i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \mathbf{p}_1 \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) (\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{E}) \right)}_{(1)} - \underbrace{(\mathbf{E} \cdot \mathbf{r}_{12}) i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \wedge \mathbf{p}_1 \right)}_{(2)} \\
&\quad - \underbrace{i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \mathbf{p}_1 \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) (\mathbf{E} \cdot \mathbf{r}_{12})}_{(3)} + \underbrace{(\mathbf{r}_{12} \cdot \mathbf{E}) i \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \wedge \mathbf{p}_1 \right)}_{(4)} = 0.
\end{aligned}$$

Leurs contribution est nulle car on voit que (1) et (3) s'annulent, ainsi que (2) et (4). on regroupe ensuite tous les éléments formés de l'opérateur  $\Sigma_2$  :

$$\begin{aligned} J_{sao}(\Sigma_2) : &= \frac{\hbar\beta_1 e^2 q c^2}{2} \left( \left( \mathbf{p}_1 \cdot \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) i\Sigma_2 \cdot (\mathbf{r}_{12} \wedge \mathbf{E}) - i\Sigma_2 \cdot (\mathbf{E} \wedge \mathbf{r}_{12}) \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_1 \right) \right. \\ &\quad \left. - \left( \mathbf{p}_1 \cdot \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) i\Sigma_2 \cdot (\mathbf{E} \wedge \mathbf{r}_{12}) + i\Sigma_2 \cdot (\mathbf{r}_{12} \wedge \mathbf{E}) \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_1 \right) \right) \\ &= \frac{\hbar\beta_1 e^2 q c^2}{2} \left( 2 \left( \mathbf{p}_1 \cdot \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) i\Sigma_2 \cdot (\mathbf{r}_{12} \wedge \mathbf{E}) + 2i\Sigma_2 \cdot (\mathbf{r}_{12} \wedge \mathbf{E}) \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_1 \right) \right) \end{aligned} \quad (2.110)$$

On transforme ensuite les deux termes de (2.110) à l'aide de la relation vectorielle (2.111) :

$$(\mathbf{A} \cdot \mathbf{C})(\mathbf{B} \cdot \mathbf{D}) = (\mathbf{A} \wedge \mathbf{B}) \cdot (\mathbf{C} \wedge \mathbf{D}) + (\mathbf{A} \cdot \mathbf{D})(\mathbf{C} \cdot \mathbf{B}). \quad (2.111)$$

On obtient :

$$\begin{aligned} \left( \mathbf{p}_1 \cdot \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) (\Sigma_2 \cdot (\mathbf{r}_{12} \wedge \mathbf{E})) &= \left( \mathbf{p}_1 \cdot \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) (\mathbf{r}_{12} \cdot (\mathbf{E} \wedge \Sigma_2)) \\ &= (\mathbf{p}_1 \wedge \mathbf{r}_{12}) \cdot \left( (\mathbf{E} \wedge \Sigma_2) \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) + (\mathbf{p}_1 \cdot (\mathbf{E} \wedge \Sigma_2)) \left( \mathbf{r}_{12} \cdot \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) \\ &\downarrow * \\ &= (\mathbf{p}_1 \wedge \mathbf{r}_{12}) \cdot \left( (\mathbf{E} \wedge \Sigma_2) \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) + \Sigma_2 \cdot \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \wedge \mathbf{E} \right) \end{aligned} \quad (2.112)$$

$$\begin{aligned} (\Sigma_2 \cdot (\mathbf{r}_{12} \wedge \mathbf{E})) \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_1 \right) &= ((\mathbf{E} \wedge \Sigma_2) \cdot \mathbf{r}_{12}) \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot \mathbf{p}_1 \right) \\ &= \left( (\mathbf{E} \wedge \Sigma_2) \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) \cdot (\mathbf{r}_{12} \wedge \mathbf{p}_1) + \left( \mathbf{r}_{12} \cdot \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) ((\mathbf{E} \wedge \Sigma_2) \cdot \mathbf{p}_1) \\ &\downarrow * \\ &= -(\mathbf{p}_1 \wedge \mathbf{r}_{12}) \cdot \left( (\mathbf{E} \wedge \Sigma_2) \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) + \Sigma_2 \cdot \left( \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \wedge \mathbf{E} \right). \end{aligned} \quad (2.113)$$

En sommant (2.112) et (2.113) on obtient la contribution  $J_{sao}$  des termes de Jauge "spin-autre-orbite" :

$$\begin{aligned} J_{sao} &= \frac{\hbar\beta_1 e^2 q c^2}{2} \left( 2i\Sigma_2 \cdot \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \wedge \mathbf{E} \right) + 2i\Sigma_2 \cdot \left( \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \wedge \mathbf{E} \right) \right) \\ &= \hbar\beta_1 e^2 q c^2 \left( i\Sigma_2 \cdot \left( \left\{ \mathbf{p}_1, \frac{1}{r_{12}} \right\} \wedge \mathbf{E} \right) \right). \end{aligned} \quad (2.114)$$

La contribution  $J_{ss}$  des termes de Jauge à l'interaction "spin-spin" comprend quatre termes :

$$\begin{aligned} J_{ss} &= \frac{\hbar\beta_1 e^2 q c^2}{2} \left( \underbrace{-\Sigma_1 \cdot \left( \mathbf{p}_1 \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) \Sigma_2 \cdot (\mathbf{r}_{12} \wedge \mathbf{E})}_{(1)} + \underbrace{\Sigma_2 \cdot (\mathbf{E} \wedge \mathbf{r}_{12}) \Sigma_1 \cdot \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \wedge \mathbf{p}_1 \right)}_{(2)} \right. \\ &\quad \left. + \underbrace{\Sigma_1 \cdot \left( \mathbf{p}_1 \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) \Sigma_2 \cdot (\mathbf{E} \wedge \mathbf{r}_{12})}_{(3)} - \underbrace{\Sigma_2 \cdot (\mathbf{r}_{12} \wedge \mathbf{E}) \Sigma_1 \cdot \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \wedge \mathbf{p}_1 \right)}_{(4)} \right). \end{aligned}$$

On remarque que (1) et (3) sont identiques. On peut transformer ce terme avec la formule vectorielle (2.111) :

$$\begin{aligned}
(1) + (3) &= 2\boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \mathbf{p}_1 \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot (\mathbf{E} \wedge \mathbf{r}_{12}) = 2((\boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1) \cdot \mathbf{r}_{12}) \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{E}) \right) \\
&= 2 \left( (\boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1) \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) \cdot (\mathbf{r}_{12} \wedge (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{E})) + 2(\boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{E}) \left( \mathbf{r}_{12} \cdot \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) \\
&\downarrow * \\
&= 2((\boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1) \wedge \mathbf{r}_{12}) \cdot \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \wedge (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{E}) \right) + 2 \left( \boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \right) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{E}). \quad (2.115)
\end{aligned}$$

De façon similaire (2) et (4) sont identiques et se transforment :

$$\begin{aligned}
(2) + (4) &= 2\boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot (\mathbf{E} \wedge \mathbf{r}_{12}) \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \wedge \mathbf{p}_1 \right) = 2(\mathbf{r}_{12} \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{E})) \left( (\mathbf{p}_1 \wedge \boldsymbol{\Sigma}_1) \cdot \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) \\
&= 2(\mathbf{r}_{12} \wedge (\mathbf{p}_1 \wedge \boldsymbol{\Sigma}_1)) \cdot \left( (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{E}) \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) + 2 \left( \mathbf{r}_{12} \cdot \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) ((\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{E}) \cdot (\mathbf{p}_1 \wedge \boldsymbol{\Sigma}_1)) \\
&\downarrow * \\
&= -2((\boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1) \wedge \mathbf{r}_{12}) \cdot \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \wedge (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{E}) \right) - 2 \left( \boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \right) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{E}). \quad (2.116)
\end{aligned}$$

En sommant (2.115) et (2.116) on reconstitue  $J_{ss}$  :

$$\begin{aligned}
J_{ss} &= \frac{\hbar\beta_1 e^2 q c^2}{2} \left( 2 \left( \boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} \right) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{E}) - 2 \left( \boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \right) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{E}) \right) \\
&= \hbar\beta_1 e^2 q c^2 \left( \boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} - \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \right) \right) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{E}) \\
&= i\hbar^2 \beta_1 e^2 q c^2 \left( \boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{E}). \quad (2.117)
\end{aligned}$$

On peut maintenant donner l'expression du terme de Jauge au troisième ordre en  $1/m$ . On ajoute les éléments relatifs à la particule (2) en permutant les indices (1) et (2) dans les formules (2.114) et (2.117) et en rappelant que  $[\mathbf{p}_1, \frac{1}{r_{12}}] = -[\mathbf{p}_2, \frac{1}{r_{12}}]$  pour la modification du signe dans le terme de couplage spin-spin issu des éléments cinétiques indicés 2. On remarque que la contribution du terme de Jauge est identique à celle du terme de Gaunt (2.103). Ainsi,

$$\begin{aligned}
J^{FW(3)} &= \frac{i\hbar e^2 q c^2}{m^3 (2ic^2)^3} \left( \beta_2 \boldsymbol{\Sigma}_1 \cdot \left( \left\{ \mathbf{p}_2, \frac{1}{r_{12}} \right\} \wedge \mathbf{E} \right) + \beta_1 \boldsymbol{\Sigma}_2 \cdot \left( \left\{ \mathbf{p}_1, \frac{1}{r_{12}} \right\} \wedge \mathbf{E} \right) \right. \\
&\quad \left. + \hbar\beta_1 \left( \boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \mathbf{E}) - \hbar\beta_2 \left( \boldsymbol{\Sigma}_2 \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) \cdot (\boldsymbol{\Sigma}_1 \wedge \mathbf{E}) \right). \quad (2.118)
\end{aligned}$$

### 2.4.5 Résultats et analyse

On regroupe à présent les expressions (2.95), (2.103) et (2.118). On opère la substitution  $\boldsymbol{\Sigma}_i \rightarrow \sigma_i$  et  $\beta_i \rightarrow 1$ . Dans (2.95) les termes "non-spin" disparaissent puisque  $[\mathbf{p}_1, \frac{1}{r_{12}}] = -[\mathbf{p}_2, \frac{1}{r_{12}}]$ . On obtient

au final l'expression suivante :

$$\begin{aligned}
H_B^{FW(3)} &= \frac{\hbar e^2 q}{4m^3 c^4} \left( \boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \left( \left\{ \mathbf{p}_1, \frac{1}{r_{12}} \right\} \wedge \mathbf{E} \right) + \boldsymbol{\sigma}_2 \cdot \left( \left\{ \mathbf{p}_2, \frac{1}{r_{12}} \right\} \wedge \mathbf{E} \right) \right. \\
&\quad - \boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \left( \left\{ \mathbf{p}_2, \frac{1}{r_{12}} \right\} \wedge \mathbf{E} \right) - \boldsymbol{\sigma}_2 \cdot \left( \left\{ \mathbf{p}_1, \frac{1}{r_{12}} \right\} \wedge \mathbf{E} \right) \\
&\quad \left. - \hbar \left( \boldsymbol{\sigma}_1 \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) \cdot (\boldsymbol{\sigma}_2 \wedge \mathbf{E}) + \hbar \left( \boldsymbol{\sigma}_2 \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) \cdot (\boldsymbol{\sigma}_1 \wedge \mathbf{E}) \right). \quad (2.119)
\end{aligned}$$

On peut préciser dans (2.119) les expressions des termes de couplage spin-orbite et spin-autre-orbite :

$$\begin{aligned}
&\frac{\hbar e^2 q}{4m^3 c^4} \boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \left( \left( \left\{ \mathbf{p}_1, \frac{1}{r_{12}} \right\} - \left\{ \mathbf{p}_2, \frac{1}{r_{12}} \right\} \right) \wedge \mathbf{E} \right) \\
&\frac{\hbar e^2 q}{4m^3 c^4} \boldsymbol{\sigma}_2 \cdot \left( \left( \left\{ \mathbf{p}_2, \frac{1}{r_{12}} \right\} - \left\{ \mathbf{p}_1, \frac{1}{r_{12}} \right\} \right) \wedge \mathbf{E} \right).
\end{aligned}$$

Il s'agit de préciser les opérateurs impliquant les commutateurs et anticommutateurs :

$$\begin{aligned}
\left\{ \mathbf{p}_1, \frac{1}{r_{12}} \right\} - \left\{ \mathbf{p}_2, \frac{1}{r_{12}} \right\} &= \left( \mathbf{p}_1 \frac{1}{r_{12}} + \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \right) - \left( \mathbf{p}_2 \frac{1}{r_{12}} + \frac{1}{r_{12}} \mathbf{p}_2 \right) \\
&= \left( \left[ \mathbf{p}_1, \frac{1}{r_{12}} \right] + \frac{2}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \right) - \left( \left[ \mathbf{p}_2, \frac{1}{r_{12}} \right] + \frac{2}{r_{12}} \mathbf{p}_2 \right) \\
&= \left( i\hbar \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} + \frac{2}{r_{12}} \mathbf{p}_1 \right) - \left( -i\hbar \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} + \frac{2}{r_{12}} \mathbf{p}_2 \right) \\
&= 2i\hbar \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} + \frac{2}{r_{12}} (\mathbf{p}_1 - \mathbf{p}_2).
\end{aligned}$$

On aura de la même manière :

$$\left\{ \mathbf{p}_2, \frac{1}{r_{12}} \right\} - \left\{ \mathbf{p}_1, \frac{1}{r_{12}} \right\} = -2i\hbar \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} + \frac{2}{r_{12}} (\mathbf{p}_2 - \mathbf{p}_1).$$

En réinjectant ces deux dernières expressions dans (2.119), et en tenant compte de la substitution par les impulsions généralisées, le hamiltonien de Breit-Pauli au troisième ordre en  $1/m$  s'écrit

$$\begin{aligned}
H^{FW(3)} &= \frac{\hbar e^2 q}{4m^3 c^4} \left( 2i\hbar \boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \wedge \mathbf{E} \right) + 2\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \left( \frac{1}{r_{12}} ((\mathbf{p}_1 - q\mathbf{A}) - (\mathbf{p}_2 - q\mathbf{A})) \wedge \mathbf{E} \right) \right. \\
&\quad - 2i\hbar \boldsymbol{\sigma}_2 \cdot \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \wedge \mathbf{E} \right) + 2\boldsymbol{\sigma}_2 \cdot \left( \frac{1}{r_{12}} ((\mathbf{p}_2 - q\mathbf{A}) - (\mathbf{p}_1 - q\mathbf{A})) \wedge \mathbf{E} \right) \\
&\quad \left. - \hbar \left( \boldsymbol{\sigma}_1 \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) \cdot (\boldsymbol{\sigma}_2 \wedge \mathbf{E}) + \hbar \left( \boldsymbol{\sigma}_2 \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) \cdot (\boldsymbol{\sigma}_1 \wedge \mathbf{E}) \right). \quad (2.120)
\end{aligned}$$

### Nature de l'interaction

Regardons à présent en détail certains termes de (2.120). Chaque spin réalise un effet de type Zeeman avec un champ magnétique effectif assez particulier. Ainsi, on peut écrire :

$$\begin{aligned}
\frac{\hbar e^2 q}{4m^3 c^4} 2i\hbar \boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \left( \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \wedge \mathbf{E} \right) &= -\frac{q_1 \hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \left( \frac{i\hbar q}{m^2 c^4} \left( \mathbf{E} \wedge \frac{q_2 \mathbf{r}_{12}}{(4\pi\epsilon_0) r_{12}^3} \right) \right) \\
&= -\frac{q_1 \hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \mathbf{B}'.
\end{aligned}$$

On rappelle que  $\mathbf{E} = \mathbf{E}_{ext}$  est le champ externe associé au laser et  $\frac{q_2 \mathbf{r}_{12}}{(4\pi\epsilon_0)r_{12}^3} = \mathbf{E}_{int}$  est le champ coulombien produit par la particule 2 sur la particule 1. Le champ magnétique effectif  $\mathbf{B}'$  prend la forme suivante :

$$\begin{aligned}\mathbf{B}' &= \frac{i\hbar q}{m^2 c^4} \left( \mathbf{E} \wedge \frac{q_2 \mathbf{r}_{12}}{(4\pi\epsilon_0)r_{12}^3} \right) \\ &= \frac{i\hbar q}{m^2 c^4} (\mathbf{E}_{ext} \wedge \mathbf{E}_{int}).\end{aligned}\quad (2.121)$$

D'après (2.121) il apparaît que les deux champs électriques, coulombien et celui du champ externe se comportent vectoriellement comme un champ magnétique. L'analyse dimensionnelle de (2.121) donne bien des Teslas. On notera que l'opérateur est non hermitique à cause de la présence du facteur  $i$ . Comparons son importance avec le champ magnétique effectif induit par l'interaction spin-orbite du second ordre en  $1/m$  :

$$\begin{aligned}H_{SO} (1/m^2) &= -\frac{q_1 \hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \frac{1}{2mc^2} \left( \frac{q_2 \mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \wedge \mathbf{p}_2 \right) \\ &= -\frac{q_1 \hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \frac{1}{2mc^2} (\mathbf{E}_{int} \wedge \mathbf{p}_2) \\ &= -\frac{q_1 \hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \mathbf{B}_{SO}.\end{aligned}$$

En supposant que  $\|\mathbf{p}_2\| \approx mc/137$ , le rapport entre les deux termes conduit à une expression fonction de l'amplitude du champ externe :

$$\frac{\|\mathbf{B}_{SO}\|}{\|\mathbf{B}'\|} = \left| \frac{(E_{int}.mc).(m^2 c^4)}{(2mc^2.137)(\hbar q_1.E_{ext}.E_{int})} \right| = \left| \frac{m^2 c^3}{2\hbar q_1.137.E_{ext}} \right| \approx \frac{10^{16}(\text{V/m})}{E_{ext}}.\quad (2.122)$$

Dans les expériences de désaimantation ultra-rapide [8] pour lesquelles  $E \approx 10^8$  V/m (voir section (5.3.1)) le rapport précédent (2.122) est évalué à  $10^8$ . Le terme perturbé par le champ externe est donc très faible par rapport à l'interaction spin-orbite. Les interactions entre spins sont aussi perturbées par la présence du champ externe au troisième ordre. On note  $H_{ss}^{FW(3)}(E)$  :

$$\begin{aligned}H_{ss}^{FW(3)}(E) &= \frac{\hbar^2 e^2 q}{4m^3 c^4} \left( \boldsymbol{\sigma}_1 \wedge \frac{\mathbf{r}_{12}}{r_{12}^3} \right) \cdot (\boldsymbol{\sigma}_2 \wedge \mathbf{E}) = \frac{\hbar^2 q_1^2}{4m^3 c^4} \left( \boldsymbol{\sigma}_1 \wedge \frac{q_2 \mathbf{r}_{12}}{(4\pi\epsilon_0)r_{12}^3} \right) \cdot (\boldsymbol{\sigma}_2 \wedge \mathbf{E}) \\ &= \frac{\hbar^2 q_1^2}{4m^3 c^4} (\boldsymbol{\sigma}_1 \wedge \mathbf{E}_{int}) (\boldsymbol{\sigma}_2 \wedge \mathbf{E}_{ext}) \\ &\approx \left| \frac{\hbar^2 q_1^2 . E_{int} . E_{ext}}{4m^3 c^4} \right|.\end{aligned}$$

Cet effet est à comparer aux termes d'interactions spin-spin du second ordre en  $1/m$  notés  $H_{(ss)}^{FW(2)}$  :

$$\begin{aligned}H_{(ss)}^{FW(2)}(r_{12}) &= -\frac{e^2 \hbar^2}{4m^2 c^2} \left( -8\pi \frac{\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\sigma}_2}{3} \delta(r_{12}) - \frac{\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \boldsymbol{\sigma}_2}{r_{12}^3} + \frac{3(\boldsymbol{\sigma}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\boldsymbol{\sigma}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{r_{12}^5} \right) \\ &\approx \left| \frac{q_1 q_2 \hbar^2}{4.(4\pi\epsilon_0)m^2 c^2 r_{12}^3} \right| = \left| \frac{q_1 \hbar^2 . E_{int}}{4m^2 c^2 r_{12}} \right|.\end{aligned}$$

Le rapport entre les deux termes ci-dessus devient fonction de la distance entre les particules et de l'amplitude du champ externe :

$$\left| \frac{H_{(ss)}^{FW(2)}(r_{12})}{H_{ss}^{FW(3)}(E)} \right| = \left| \frac{(q_1 \hbar^2 . E_{int})(4m^3 c^4)}{(4m^2 c^2 r_{12})(\hbar^2 q_1^2 . E_{int} . E_{ext})} \right| = \left| \frac{mc^2}{q E_{ext} . r_{12}} \right| \approx \frac{10^6(\text{V})}{E_{ext} . r_{12}}.\quad (2.123)$$

En prenant une distance de l'ordre de l'Angstrom  $r_{12} \approx 10^{-10}$  m et une amplitude du champ électrique  $E \approx 10^8$  V/m le rapport entre ces deux contributions est aussi évalué à  $10^8$ . On peut donc conclure que ces termes sont négligeables dans le régime femtoseconde.

Remarque :

Dans les **expériences d'ionisation de la matière** par des impulsions laser (Physique des Plasmas Chauds), les impulsions lumineuses utilisées ont une durée de 500 fs pour une énergie de 6 J. L'énergie  $u$ , associée à une telle impulsion de durée  $\tau$  et de section  $S = 0.001$  mm<sup>2</sup>, est reliée à l'amplitude du champ électrique  $E$  par la relation  $u = (\frac{1}{2}\epsilon_0 E) c\tau S$ . L'amplitude du champ électrique est alors de l'ordre de  $E \approx 10^{12}$  V/m. Les rapports (2.122) et (2.123) gagnent quatre ordres de grandeurs et s'évaluent à  $10^4$ .

### Champ électrique Compton

On peut déduire des deux rapports précédents un ordre de grandeur caractéristique du champ électrique nécessaire pour que les deux contributions soient égales. D'après (2.122) le champ électrique critique vaut en introduisant la longueur d'onde Compton  $\lambda_C = \frac{h}{mc}$  et  $\alpha = 1/137$  la constante de structure fine :

$$E = \frac{\alpha m^2 c^3}{2 q \hbar} \approx \frac{mc^2}{q \lambda_C}. \quad (2.124)$$

En utilisant (2.123) on obtient la relation suivante :

$$E r_{12} = \frac{mc^2}{q},$$

qui conduit presque au même ordre de grandeur si on pose  $r_{12} = \lambda_C$ . Comme dans l'étude à un électron les longueurs d'onde et périodes caractéristiques de la fréquence Compton associée au phénomène de création et d'annihilation de paires semblent être une limite où les corrections relativistes sont toutes de même amplitude. Ce que nous appelons champ électrique Compton est le champ électrique associé au potentiel électrique entre deux points distants de  $\lambda_C$  qui permet d'obtenir une énergie potentielle égale à l'énergie de masse :

$$E_C \approx \frac{mc^2}{q \lambda_C} = 2.3 * 10^{17} \text{V/m.}$$

C'est une valeur considérable.

### Unités atomiques

On peut exprimer le champ électrique Compton  $E_C$  en fonction de la constante de structure fine  $\alpha = \frac{e^2}{\hbar c}$  et de la valeur du champ électrique à une distance égale au rayon de Bohr  $a_B = \frac{\hbar^2}{me^2} = 2.529$  pm,  $E_{a_B} = \frac{e^2}{a_B^2} = 5.14 * 10^{12}$  V/m (ordre de grandeur caractéristique du champ électrique nécessaire pour ioniser la matière). On introduit le rayon Compton  $a_C$  tel que  $a_c = \frac{\hbar}{mc}$ . Ainsi :

$$a_C = \frac{\hbar}{mc} = \frac{\hbar^2}{me^2} \frac{e^2}{\hbar} = a_B \alpha.$$

En définissant plutôt  $E_C = \frac{e^2}{a_C^2}$  on obtient alors :

$$E_C = \frac{e^2}{a_C^2} = \frac{e^2}{a_B^2 \alpha^2} = \frac{E_{a_B}}{\alpha^2} \approx 9.6 * 10^{16} \text{V/m.}$$

## 2.5 Intérêts et bases d'un développement au quatrième ordre en $1/m$

« Breit-Pauli au cinquième ordre.  
Vous en avez marre ? Nous aussi. »

Pour finir ce chapitre on explique l'intérêt de poursuivre la procédure de la TFW à des ordres supérieurs. On propose de développer le hamiltonien transformé de Breit au quatrième et cinquième ordre en  $1/m$  ce qui nécessite de définir au préalable un lagrangien relativiste non quantique de l'interaction électromagnétique entre deux particules.

### 2.5.1 Problématique

Les résultats de la TFW au troisième ordre en  $1/m$  ont montré que le champ coulombien et le champ externe pouvaient se coupler et agir comme un champ magnétique. L'aspect temporel de la TFW utilisée dans l'étude à un électron a mis en évidence l'existence de couplage entre les degrés de libertés de spin et les dérivées temporelles du champ électromagnétique (formule (1.100)). Ces effets sont d'autant plus importants que la pulsation du champ externe est élevée. Il paraît naturel de suspecter qu'une TFW temporelle du hamiltonien de Breit réalisée à des ordres plus élevés dévoile des couplages entre les spins, l'interaction coulombienne et les dérivées temporelles du champ électromagnétique.

En extrapolant un peu plus, on peut envisager l'existence d'une systématique mathématique, similaire au cas mono-électronique, mais régissant l'interaction entre les particules perturbées par le champ électromagnétique et ses dérivées temporelles. Bien que ces effets soient négligeables au troisième ordre en  $1/m$  dans un régime femtoseconde, il est impossible de prédire qu'ils le deviennent dans des régimes attosecondes ou sub-attosecondes pour lesquels les valeurs de champs électriques associés aux impulsions laser sont plus élevées, et pour lesquels les corrections relativistes dépendantes du temps possèdent des amplitudes plus élevées.

Etant donné que l'on ne peut deviner l'allure mathématique de cette hypothétique systématique, il faudrait développer la TFW du hamiltonien de Breit au quatrième et cinquième ordre en  $1/m$  et vérifier, tout d'abord si l'impact du champ électrique externe se traduit par l'apparition de dérivées temporelles d'ordres plus élevés. On peut pressentir le comportement suivant :

Ordre en ( $1/m$ )	2	3	4	5
1 particule	$\mathbf{E}$	$\dot{\mathbf{E}}$	$\ddot{\mathbf{E}}$	$\dddot{\mathbf{E}}$
2 particules		$\mathbf{E}$	$\dot{\mathbf{E}}?$	$\ddot{\mathbf{E}}?$

Pour réaliser une telle étude au cinquième ordre en  $1/m$  la diagonalisation du hamiltonien Breit n'est pas suffisante. Le hamiltonien de Breit est construit à partir du lagrangien de Darwin qui représente un développement à l'ordre  $1/c^2$  de l'interaction électromagnétique. Pour obtenir l'ensemble des termes aux ordres supérieurs il faut partir d'un développement à l'ordre  $1/c^4$  de l'énergie potentielle électromagnétique et construire le hamiltonien de Breit correspondant.

### 2.5.2 Lagrangien de Darwin au quatrième ordre en $1/c$

On trouve dans la littérature des développements du lagrangien de Darwin à l'ordre  $1/c^4$ . Golubnikov et Smorodinskii semblent avoir été les premiers à obtenir une telle expression [20], [21], [23]. Molina, Llosa et Jaen [24] ont proposé un développement polynomial du lagrangien et obtiennent au quatrième ordre en  $1/c$  une expression différente. D'après Damour et Schäfer [25], leur papier [24] présente des erreurs et ils donnent une expression du Hamiltonien qui correspond à la transformation de Legendre du lagrangien proposé par Golubnikov et Smorodinskii. On donne ici l'expression de  $H$  proposée dans [25] :

$$H = H_0 + \frac{1}{c^2}H_2 + \frac{1}{c^4}H_4 + \vartheta(1/c^6),$$

avec :

$$\begin{aligned} H_0 &= \sum_{i=1}^2 \frac{\mathbf{p}_i^2}{2m} + \frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0 r_{12}} \\ H_2 &= \sum_{i=1}^2 \frac{\mathbf{p}_i^4}{8m^3} + \frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0} \left( \frac{\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{p}_2}{2r_{12}} + \frac{(\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})(\mathbf{p}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})}{2r_{12}^3} \right) \\ H_4 &= \sum_{i=1}^2 \frac{\mathbf{p}_i^6}{16m^5} + \frac{q_1 q_2}{4m^2(4\pi\epsilon_0)} \left[ \frac{1}{m^2} \left( \frac{\mathbf{p}_1^2 \mathbf{p}_2^2}{2r_{12}} - \frac{(\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{p}_2)^2}{r_{12}} + \frac{3}{2} \frac{(\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{r}_{12})^2 (\mathbf{p}_2 \cdot \mathbf{r}_{12})^2}{2r_{12}^3} \right) \right. \\ &\quad \left. + \sum_{i=1}^2 \sum_{i \neq j} \frac{\mathbf{p}_i^2}{m} \left( \frac{\mathbf{p}_i \cdot \mathbf{p}_j}{m} + \frac{(\mathbf{p}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})(\mathbf{p}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{mr_{ij}^2} - \frac{(\mathbf{p}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})^2}{2m} \right) \right] + \frac{q_1^2 q_2^2}{4m^2(4\pi\epsilon_0)^2 r_{12}^2} \sum_{i=1}^2 \frac{\mathbf{p}_i^2}{m} - \frac{q_1^3 q_2^3}{4m^2(4\pi\epsilon_0)^3 r_{12}^3}. \end{aligned} \tag{2.125}$$

Pour obtenir le hamiltonien de Breit-Pauli au cinquième ordre en  $1/m$  il faut construire le hamiltonien de Breit au quatrième ordre en remplaçant  $\frac{\mathbf{p}_i}{m}$  par  $c\boldsymbol{\alpha}_i$  dans la formule (2.125). Cependant pour réaliser une diagonalisation exacte il faudra tenir compte des deux points suivants :

- Déterminer une procédure de transformation de Foldy-Wouthuysen qui permette de construire un **hamiltonien d'interaction transformé exclusivement doublement pair**.
- Tenir compte de la non commutativité des opérateurs impulsions  $\mathbf{p}_i$  avec le champ électrique externe  $\mathbf{E}$  et ses dérivées temporelles  $\frac{\partial^n \mathbf{E}}{\partial t^n}$ . Ce dernier point est essentiel pour décrire correctement l'interaction rayonnement-matière au delà de la limite femtoseconde.

## Chapitre 3

# Dynamique quantique relativiste d'un système de $N$ particules en interaction mutuelle

Dans ce troisième chapitre on cherche à établir une théorie de champ moyen qui intègre l'ensemble des effets relativistes du second ordre en  $1/m$ , et qui soit auto-cohérente avec les équations de Maxwell. On cherche essentiellement à inclure l'information relative à l'interaction spin-orbite pour un système composé d'un grand nombre de particules en interaction mutuelle, et de pouvoir comparer les effets induits par un champ externe dépendant du temps, à ceux produits par les particules du système. La section (3.1) présente la problématique de la formulation mathématique des équations de Maxwell avec sources, qui permet de bâtir une théorie auto-cohérente avec le hamiltonien électronique utilisé. On se concentre sur la description des champs internes, et les choix réalisés font échos aux résultats du deuxième chapitre sur la façon de décrire l'interaction entre particules chargées. La section (3.1.4) présente des analogies intéressantes et conditionne le développement de l'ensemble du troisième chapitre. Ainsi, la section (3.2) est consacrée aux développements en puissance de  $1/m$  des sources des champs électromagnétiques dues aux charges et aux courants. Elle présente également la difficulté de définir correctement les notions de densité de probabilité lorsqu'on travaille avec des fonctions d'onde issues d'une transformation unitaire. On présente ensuite deux théories de champ moyen. La première est réalisée en couplant le hamiltonien électronique de façon auto-cohérente avec les équations de Maxwell dans la jauge de Coulomb et dans l'approximation quasistatique. La seconde est obtenue à partir du principe variationnel utilisé pour dériver les équations de Hartree. On compare ensuite les deux méthodes. Ces travaux sont réalisés dans un formalisme de Dirac (quantique relativiste) dans la section (3.3) puis dans le cadre de la mécanique quantique non-relativiste à partir du hamiltonien de Foldy-Wouthuysen au deuxième ordre en  $1/m$  dans la section (3.4). La section (3.5) est consacrée aux modifications à apporter aux modèles si l'on souhaite ajouter un champ externe dépendant du temps. Les termes d'échanges et de corrélations ne sont pas pris en compte.

### 3.1 Position du problème

« Quand il ya un électron ça va...il en faut toujours un...c'est quand il y en a plusieurs que ça pose des problèmes... »

Physicien Auvergnat

La section (3.1.1) rappelle une théorie de champ moyen permettant de décrire un système de  $N$  particules en interaction coulombienne de façon auto-cohérente avec l'équation de Poisson. On cherche

dans la section (3.1.2) à compléter ce modèle avec le hamiltonien de Foldy-Wouthuysen au deuxième ordre en  $1/m$  qui présente des termes comportant l'opérateur de spin. Il se pose la problématique de la formulation mathématique des équations de Maxwell impliquant les potentiels vecteur  $\mathbf{A}$  et scalaire  $\Phi$ . On montre dans la section (3.1.3) que dans la jauge de Coulomb et dans le cadre de l'approximation quasistatique, on peut obtenir des potentiels électromagnétiques moyens permettant de constituer un analogue du lagrangien de Darwin. Ce fait nous invite à rappeler des éléments importants rencontrés dans le deuxième chapitre et qui nous permettent de constituer une problématique plus approfondie dans la section (3.1.4). On présentera l'axe de recherche de l'ensemble du troisième chapitre.

### 3.1.1 Potentiel électrostatique auto-cohérent

Soit un système de  $N$  électrons de charge  $q$  en interaction coulombienne. L'équation de Schrödinger stationnaire exacte du problème est la suivante :

$$\left( \sum_{i=1}^N \frac{p_i^2}{2m} + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} \frac{q_i q_j}{4\pi\epsilon_0 |\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} \right) \Psi = E\Psi, \quad (3.1)$$

où  $\Psi$  est la fonction d'onde totale du système. On ne sait pas résoudre ce système de manière exacte et il faut avoir recours à des solutions approchées. Une des solutions est l'opération de réduction en champ moyen. On suppose que le potentiel électrostatique créé par l'ensemble des charges est équivalent à un potentiel électrostatique moyen  $\Phi(\mathbf{x}, t)$ . Ainsi, chaque particule est décrite de façon indépendante et obéit à l'équation de Schrödinger suivante :

$$\left( \frac{p^2}{2m} + q\Phi(\mathbf{x}, t) \right) \phi(\mathbf{x}, t) = \epsilon\phi(\mathbf{x}, t), \quad (3.2)$$

où  $\phi(\mathbf{x}, t)$  est la fonction d'onde de la particule et  $\epsilon$  son énergie propre. Le potentiel électrostatique moyen  $\Phi(\mathbf{x}, t)$  est décrit par l'équation macroscopique de Poisson :

$$\Delta\Phi(\mathbf{x}, t) = -\frac{\rho(\mathbf{x}, t)}{\epsilon_0}, \quad (3.3)$$

où  $\rho(\mathbf{x}, t)$  est la densité volumique de charge de l'ensemble du système. La solution de (3.3) est donnée sous forme intégrale par :

$$\Phi(\mathbf{x}, t) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \int \frac{d\mathbf{x}' \rho(\mathbf{x}', t)}{r}, \quad (3.4)$$

où  $r = \|\mathbf{x} - \mathbf{x}'\|$ . Pour coupler de façon auto-cohérente les équations (3.2) et (3.3) on suppose que la densité de charge  $\rho(\mathbf{x}, t)$  s'exprime à l'aide de la densité de probabilité de présence relative à chaque particule :

$$\rho(\mathbf{x}, t) = q \sum_{i=1}^N \rho_i(\mathbf{x}, t) = q \sum_{i=1}^N \phi_i^\dagger(\mathbf{x}) \phi_i(\mathbf{x}) = q \sum_{i=1}^N |\phi_i(\mathbf{x})|^2. \quad (3.5)$$

Ainsi le potentiel  $\Phi(\mathbf{x}, t)$ , solution de l'équation de Poisson s'écrit :

$$\Phi(\mathbf{x}, t) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \int d\mathbf{x}' \sum_{i=1}^N \frac{q|\phi_i(\mathbf{x}')|^2}{r}. \quad (3.6)$$

L'expression (3.6) est complètement équivalente au potentiel moyen de Hartree. Dans l'approximation de Hartree, la fonction d'onde totale du système est décrite comme produit des  $N$  fonctions d'onde monoélectroniques :

$$\Psi = \Psi(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_N) = \phi_1(\mathbf{r}_1) \phi_2(\mathbf{r}_2) \dots \phi_N(\mathbf{r}_N). \quad (3.7)$$

En utilisant cette hypothèse on peut transformer l'équation d'évolution (3.1) en  $N$  équations indépendantes (voir *Annexe Equations de Hartree*) :

$$\sum_{i=1}^N \left( \frac{p_i^2}{2m} + \frac{q_i}{4\pi\epsilon_0} \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \frac{q_j |\phi_j(\mathbf{r}_j)|^2}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} - \epsilon_i \right) \phi_i(\mathbf{r}_i) = 0, \quad (3.8)$$

qui permettent de décrire chaque particule selon l'équation de Schrödinger suivante :

$$\left( \frac{p_i^2}{2m} + \frac{q_i}{4\pi\epsilon_0} \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \frac{q_j |\phi_j(\mathbf{r}_j)|^2}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} \right) \phi_i(\mathbf{r}_i) = \epsilon_i \phi_i(\mathbf{r}_i), \quad (3.9)$$

où le potentiel électrostatique ressenti par une particule s'apparente à un potentiel moyen. Dans la formule précédente, le vecteur position  $\mathbf{r}_i$  de l'électron  $i$  est équivalent au vecteur position  $\mathbf{x}$  de la formule (3.6) et les vecteurs positions  $\mathbf{r}_j$  des autres électrons  $j$  aux vecteurs positions  $\mathbf{x}'$ .

$$\Phi(\mathbf{x}, t) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \int d\mathbf{x}' \sum_{i=1}^N \frac{q |\phi_i(\mathbf{x}')|^2}{r} = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \frac{q_j |\phi_j(\mathbf{r}_j)|^2}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|}.$$

### 3.1.2 Prise en compte des interactions magnétiques

On aimerait ajouter à la description précédente, des éléments d'interaction rayonnement-matière supplémentaires ainsi que les opérateurs impliquant le moment magnétique de spin. L'intérêt principal est d'incorporer dans une théorie de champ moyen les informations relatives au couplage spin-orbite présent au second ordre en  $1/m$ , et de pouvoir comparer l'importance des interactions induites par le champ externe de celles produites par l'ensemble des particules en interaction mutuelle. Ainsi, en considérant un système de  $N$  électrons en interaction et en présence d'un champ électromagnétique externe, on souhaiterait que chaque électron puisse être décrit par le hamiltonien transformé de Foldy-Wouthuysen du second ordre en  $1/m$  :

$$H = \frac{(\mathbf{p} - q\mathbf{A})^2}{2m} + q\Phi - \frac{q\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B} - \frac{q\hbar^2}{8m^2c^2} \boldsymbol{\nabla} \cdot \mathbf{E} - \frac{q\hbar}{8m^2c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - q\mathbf{A}) - (\mathbf{p} - q\mathbf{A}) \wedge \mathbf{E}). \quad (3.10)$$

Dans l'équation (3.10), les champs électrique  $\mathbf{E}$  et magnétique  $\mathbf{B}$  dérivent de potentiels vecteur  $\mathbf{A}$  et scalaire  $\Phi$ , et représentent la superposition des champs externes et internes. On écrit de façon générale :

$$\begin{aligned} \Phi &= \Phi_{int}(\mathbf{x}, t) + \Phi_{ext}(\mathbf{x}, t) \\ \mathbf{A} &= \mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t) + \mathbf{A}_{ext}(\mathbf{x}, t). \end{aligned}$$

Le couple  $(\Phi_{ext}(\mathbf{x}, t), \mathbf{A}_{ext}(\mathbf{x}, t))$  correspond aux potentiels vecteur et scalaire du champ électromagnétique externe. Dans le cas qui nous intéresse, il s'agit d'un champ électromagnétique associé à une impulsion laser ultra-brève, dont on peut considérer que les sources sont localisées à l'infini. Au second ordre en  $1/m$ , la prise en compte d'un champ électromagnétique dépendant du temps ne pose a priori pas de difficultés particulières car chaque particule interagit de façon identique avec le champ selon les éléments de couplage de l'équation (3.10). Dans la perspective d'un calcul numérique, il suffit de choisir une fonction mathématique pour décrire le champ externe. On choisit donc de négliger pour l'instant la contribution du champ externe, nous en reparlerons dans la section (5.3).

On concentre notre attention sur le couple  $(\Phi_{int}(\mathbf{x}, t), \mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t))$  en supposant qu'il correspond à un

potentiel scalaire moyen  $\Phi_{int}(\mathbf{x}, t)$  ainsi qu'à un potentiel vecteur moyen  $\mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t)$  produits par l'ensemble des charges électriques constituant le système. Ces potentiels produisent les champs électrique moyen  $\mathbf{E}_{int}(\mathbf{x}, t)$  et magnétique moyen  $\mathbf{B}_{int}(\mathbf{x}, t)$  selon :

$$\begin{cases} \Phi_{int}(\mathbf{x}, t) \\ \mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t) \end{cases} \quad \Longrightarrow \quad \begin{cases} \mathbf{E}_{int}(\mathbf{x}, t) = -\nabla\Phi_{int}(\mathbf{x}, t) \\ \mathbf{B}_{int}(\mathbf{x}, t) = \nabla \wedge \mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t) \end{cases} .$$

En négligeant pour l'instant l'aspect lié au champ externe, on cherche à étudier le comportement d'un électron, décrit par une fonction d'onde  $\phi(\mathbf{x}, t) = \phi$ , qui évoluerait selon l'équation de Schrödinger suivante :

$$\left( \frac{(\mathbf{p} - q\mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t))^2}{2m} + q\Phi_{int}(\mathbf{x}, t) - \frac{q\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B}_{int}(\mathbf{x}, t) - \frac{q\hbar^2}{8m^2c^2} \nabla \cdot \mathbf{E}_{int}(\mathbf{x}, t) - \frac{q\hbar}{8m^2c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E}_{int}(\mathbf{x}, t) \wedge (\mathbf{p} - q\mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t)) - (\mathbf{p} - q\mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t)) \wedge \mathbf{E}_{int}(\mathbf{x}, t)) \right) \phi = i\hbar \frac{\partial \phi}{\partial t} .$$

Pour que la théorie de champ moyen soit auto-cohérente avec les équations de Maxwell, il faut que :

- les potentiels internes scalaire  $\Phi_{int}(\mathbf{x}, t)$  et vecteur  $\mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t)$  soient reliés respectivement à la densité de charge  $\rho(\mathbf{x}, t)$  et de courant  $\mathbf{j}(\mathbf{x}, t)$  selon des équations dérivant des équations de Maxwell,
- la densité de charge  $\rho(\mathbf{x}, t)$  et de courant  $\mathbf{j}(\mathbf{x}, t)$  doivent s'exprimer à l'aide de fonctions d'onde  $\phi(\mathbf{x}, t) = \phi$  associée aux électrons du système.
- la densité de charge  $\rho(\mathbf{x}, t)$  et la densité de courant  $\mathbf{j}(\mathbf{x}, t)$  doivent satisfaire une équation de continuité :

$$\frac{\partial \rho(\mathbf{x}, t)}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{j}(\mathbf{x}, t) = 0.$$

Concernant le premier point, on peut s'inspirer de ce qui est réalisé dans la section (3.1.1) et dire que le potentiel scalaire  $\Phi(\mathbf{x}, t)$  est relié à la densité de charge  $\rho(\mathbf{x}, t)$  selon l'équation de Poisson :

$$\Delta \Phi_{int}(\mathbf{x}, t) = -\frac{\rho(\mathbf{x}, t)}{\epsilon_0}, \quad \text{avec} \quad \rho(\mathbf{x}, t) = q \sum_{i=1}^N |\phi_i(\mathbf{x})|^2.$$

On cherche alors une équation similaire permettant de relier le potentiel vecteur  $\mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t)$  à la densité de courant  $\mathbf{j}(\mathbf{x}, t)$  produite par l'ensemble des charges. On choisit de se placer dans la **jaugé de Coulomb dans le cadre de l'approximation quasistatique**. Sous ces hypothèses, le potentiel vecteur  $\mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t)$  est relié à la densité de courant transverse  $\mathbf{j}_T(\mathbf{x}, t)$  selon une équation de type Poisson suivante :

$$\Delta \mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t) = -\mu_0 \mathbf{j}_T(\mathbf{x}, t). \quad (3.11)$$

On justifie l'équation (3.11) dans la section (3.1.3) et on montre comment le courant transverse  $\mathbf{j}_T(\mathbf{x}, t)$  est relié au courant total  $\mathbf{j}(\mathbf{x}, t)$ . A propos du second et du troisième point, il faut pouvoir associer la densité de courant à la **densité de courant de probabilité quantique** exprimée en fonction des fonctions d'onde  $\phi_i$  :

$$\mathbf{j}(\mathbf{x}, t) = q \sum_{i=1}^N f \left( \phi_i^\dagger(\mathbf{x}, t), \phi_i(\mathbf{x}, t) \right).$$

Cette expression dépend du hamiltonien électronique utilisé. L'expression de la densité de courant de probabilité quantique obtenue à partir du hamiltonien de FW au deuxième ordre en  $1/m$  est précisée dans la section (3.2.1) et l'équation de continuité associée est présentée dans la section (3.2.2).

### 3.1.3 Potentiels électromagnétiques

On montre comment obtenir l'équation (3.11). A partir des quatre équations de Maxwell, reliant les champs électrique  $\mathbf{E}$  et magnétique  $\mathbf{B}$  :

$$\begin{aligned}\nabla \cdot \mathbf{E} &= \frac{\rho}{\epsilon_0} & \nabla \cdot \mathbf{B} &= 0 \\ \nabla \wedge \mathbf{E} &= -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} & \nabla \wedge \mathbf{B} &= \mu_0 \mathbf{j} + \mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t},\end{aligned}$$

on peut former les équations régissant les évolutions des potentiels vecteur  $\mathbf{A}$  et scalaire  $\Phi$  :

$$\begin{aligned}\Delta \Phi + \frac{\partial}{\partial t} \nabla \cdot \mathbf{A} &= -\frac{\rho}{\epsilon_0} \\ \Delta \mathbf{A} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{A}}{\partial t^2} - \nabla \left( \nabla \cdot \mathbf{A} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial \Phi}{\partial t} \right) &= -\mu_0 \mathbf{j}.\end{aligned}\quad (3.12)$$

Les équations (3.12) peuvent être précisées selon le choix de jauge que l'on fait. Dans la **jauge de Lorentz**, on obtient les équations suivantes :

$$(3.12) + \left( \nabla \cdot \mathbf{A} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial \Phi}{\partial t} = 0 \right) \quad \Leftrightarrow \quad \begin{aligned}\Delta \Phi - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \Phi}{\partial t^2} &= -\frac{\rho}{\epsilon_0} \\ \Delta \mathbf{A} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{A}}{\partial t^2} &= -\mu_0 \mathbf{j},\end{aligned}$$

dont les solutions sont données par l'expression des potentiels retardés de Liénard-Wiechert (voir section (2.1.1)). En se plaçant dans la **jauge de Coulomb**, les équations (3.12) deviennent :

$$(3.12) + (\nabla \cdot \mathbf{A} = 0) \quad \Leftrightarrow \quad \begin{aligned}\Delta \Phi &= -\frac{\rho}{\epsilon_0} \\ \Delta \mathbf{A} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{A}}{\partial t^2} &= -\mu_0 \mathbf{j} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial}{\partial t} \nabla \Phi.\end{aligned}\quad (3.13)$$

On choisit ensuite de se placer dans l'**approximation quasistatique** pour laquelle  $\Delta \mathbf{A} \gg \frac{\partial^2}{c^2 \partial t^2} \mathbf{A}$ . (3.13) devient :

$$\begin{aligned}\Delta \Phi &= -\frac{\rho}{\epsilon_0} \\ \Delta \mathbf{A} &= -\mu_0 \mathbf{j} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial}{\partial t} \nabla \Phi.\end{aligned}\quad (3.14)$$

On peut expliciter les termes sources de la dernière équation (3.14). Pour cela on utilise l'expression intégrale du potentiel scalaire solution de l'équation de Poisson dans la jauge de Coulomb :

$$\Phi(\mathbf{x}, t) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \int \frac{d\mathbf{x}' \rho(\mathbf{x}', t)}{r}.$$

On transforme le deuxième terme de (3.14) à l'aide de la relation de continuité  $\partial_t \rho + \nabla \cdot \mathbf{j} = 0$  :

$$\begin{aligned}\frac{1}{c^2} \frac{\partial}{\partial t} \nabla \Phi &= \frac{1}{c^2} \nabla \frac{\partial}{\partial t} \left( \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \int \frac{d\mathbf{x}' \rho(\mathbf{x}', t)}{r} \right) \\ &= \frac{1}{(4\pi\epsilon_0)c^2} \nabla \int \frac{d\mathbf{x}'}{r} \frac{\partial}{\partial t} \rho(\mathbf{x}', t) \\ &= -\frac{\mu_0}{4\pi} \nabla \int \frac{d\mathbf{x}'}{r} \nabla' \cdot \mathbf{j}(\mathbf{x}', t)\end{aligned}\quad (3.15)$$

On peut montrer que (3.15) correspond à la densité de courant longitudinal  $\mathbf{j}_L(\mathbf{x}, t)$ . En effet dans l'ouvrage *Classical Electrodynamics* de J. D. Jackson [13], la densité de courant  $\mathbf{j}(\mathbf{x}, t)$  est décomposée en sa partie transverse  $\mathbf{j}_T(\mathbf{x}, t)$  et sa partie longitudinale  $\mathbf{j}_L(\mathbf{x}, t)$  selon :

$$\mathbf{j}(\mathbf{x}, t) = \mathbf{j}_L(\mathbf{x}, t) + \mathbf{j}_T(\mathbf{x}, t),$$

où  $\mathbf{j}_T(\mathbf{x}, t)$  et  $\mathbf{j}_L(\mathbf{x}, t)$  sont donnés par les expressions suivantes :

$$\begin{aligned}\mathbf{j}_T(\mathbf{x}, t) &= \frac{1}{4\pi} \nabla \times \nabla \times \int \frac{d\mathbf{x}'}{r} \mathbf{j}(\mathbf{x}', t) \\ \mathbf{j}_L(\mathbf{x}, t) &= -\frac{1}{4\pi} \nabla \int \frac{d\mathbf{x}'}{r} \nabla' \cdot \mathbf{j}(\mathbf{x}', t).\end{aligned}$$

On montre ainsi que le terme source de (3.15) représente le courant transverse :

$$\Delta \mathbf{A} = -\mu_0 \mathbf{j} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial}{\partial t} \nabla \Phi = -\mu_0 \mathbf{j} - \frac{\mu_0}{4\pi} \nabla \int \frac{d\mathbf{x}'}{r} \nabla' \cdot \mathbf{j}(\mathbf{x}', t) = -\mu_0 (\mathbf{j} - \mathbf{j}_L) = -\mu_0 \mathbf{j}_T. \quad (3.16)$$

On trouve dans [88] un développement du courant transverse qui s'écrit directement en fonction du courant total :

$$\mathbf{j}_T(\mathbf{x}, t) = \frac{1}{4\pi} \nabla \times \nabla \times \int \frac{d\mathbf{x}'}{r} \mathbf{j}(\mathbf{x}', t) = \frac{\mathbf{j}(\mathbf{x}, t)}{2r} + \frac{\mathbf{r}(\mathbf{r} \cdot \mathbf{j}(\mathbf{x}, t))}{2r^3}. \quad (3.17)$$

## Conclusion

Pour résumer, on peut dire que dans la **jauge de Coulomb** ( $\nabla \cdot \mathbf{A} = 0$ ) et dans le cadre de **l'approximation quasistatique** ( $\Delta \mathbf{A} \gg \frac{\partial^2}{c^2 \partial t^2} \mathbf{A}$ ), les potentiels scalaire et vecteur sont solutions d'équations de type "Poisson" avec en termes sources respectivement la densité de charge  $\rho$  et le vecteur densité de courant transverse  $\mathbf{j}_T$  :

$$\begin{aligned}\Delta \Phi(\mathbf{x}, t) &= -\frac{\rho(\mathbf{x}, t)}{\epsilon_0} \\ \Delta \mathbf{A}(\mathbf{x}, t) &= -\mu_0 \mathbf{j}_T(\mathbf{x}, t).\end{aligned}$$

Le courant transverse est relié au courant total par la relation :

$$\mathbf{j}_T(\mathbf{x}, t) = \nabla \times \nabla \times \int \frac{d\mathbf{x}'}{r} \mathbf{j}(\mathbf{x}', t),$$

où  $r = \|\mathbf{x} - \mathbf{x}'\|$  avec  $\mathbf{x}'$  le vecteur position des sources et  $\mathbf{x}$  le vecteur position de l'endroit où l'on mesure les champs. Les potentiels s'écrivent avec  $r' = \|\mathbf{x}' - \mathbf{x}''\|$  :

$$\Phi(\mathbf{x}, t) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \int \frac{d\mathbf{x}' \rho(\mathbf{x}', t)}{r} \quad (3.18)$$

$$\begin{aligned}\mathbf{A}(\mathbf{x}, t) &= \frac{\mu_0}{4\pi} \int \frac{d\mathbf{x}' \mathbf{j}_T(\mathbf{x}', t)}{r} \\ &= \frac{\mu_0}{4\pi} \int \frac{d\mathbf{x}'}{r} \left( \frac{1}{4\pi} \nabla' \times \nabla' \times \int \frac{d\mathbf{x}''}{r'} \mathbf{j}(\mathbf{x}'', t) \right) \\ &= \frac{1}{2(4\pi\epsilon_0)c^2} \int dx' \left( \frac{\mathbf{j}(\mathbf{x}', t)}{r} + \frac{\mathbf{r}(\mathbf{r} \cdot \mathbf{j}(\mathbf{x}', t))}{r^3} \right).\end{aligned} \quad (3.19)$$

## Potentiel vecteur de Darwin

Il est intéressant de constater que l'expression (3.19) du potentiel vecteur obtenu est celle permettant de **constituer le lagrangien de Darwin** qui décrit l'énergie de deux particules chargées en interaction au **deuxième ordre** en  $\frac{v}{c}$ . Dans la référence [88], l'expression (3.19) est appelée potentiel vecteur de Darwin. En effet, considérons un système classique de deux électrons de charge  $q_1$  et  $q_2$  en interaction. L'électron de charge  $q_1$  ressent les potentiels électromagnétiques créés par la charge  $q_2$  et l'énergie électromagnétique s'écrit :

$$U = q_1 \Phi_2 - q_1 \mathbf{v}_1 \cdot \mathbf{A}_2.$$

En définissant la densité de charge  $\rho_2(\mathbf{x}', t)$  et la densité de courant  $\mathbf{j}_2(\mathbf{x}', t)$  de la manière suivante, on peut transformer (3.18) et (3.19) selon :

$$\left\{ \begin{array}{l} \rho_2(\mathbf{x}', t) = q_2 \delta(x') \\ \mathbf{j}_2(\mathbf{x}', t) = q_2 \delta(x') \mathbf{v}_2 \end{array} \right. \implies \left\{ \begin{array}{l} (3.18) = \Phi_2 = \frac{q_2}{4\pi\epsilon_0 r} \\ (3.19) = \mathbf{A}_2 = \frac{q_2}{(4\pi\epsilon_0)c^2} \left( \frac{\mathbf{v}_2}{2r} + \frac{\mathbf{r}(\mathbf{r} \cdot \mathbf{v}_2)}{2r^3} \right) \end{array} \right.$$

L'énergie électromagnétique devient :

$$U = \frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0 r} - \frac{q_1 q_2}{(4\pi\epsilon_0)c^2} \left( \frac{\mathbf{v}_1 \cdot \mathbf{v}_2}{2r} + \frac{(\mathbf{v}_1 \cdot \mathbf{r})(\mathbf{r} \cdot \mathbf{v}_2)}{2r^3} \right).$$

On retrouve les expressions obtenues en section (2.1.1) à partir des expressions des potentiels retardés de Liénard-Wiechert. Ce résultat est tout à fait logique car pour l'obtenir, les expressions exactes des potentiels retardés exprimées dans la jauge de Lorentz, ont été développées au deuxième ordre en  $1/c$  dans l'approximation quasistatique puis transformées par passage dans la jauge de Coulomb. Les deux approches sont donc complètement équivalentes.

### 3.1.4 Conséquences, questionnements et projets

Les résultats de la section précédente permettent de faire un **lien étroit avec le deuxième chapitre**, dans lequel nous avons étudié les fonctions énergétiques d'interaction entre deux particules d'un point de vue classique relativiste, quantique relativiste et quantique non-relativiste. Nous avons vu que le lagrangien de Darwin permet de décrire l'interaction électromagnétique entre deux particules chargées au second ordre en  $1/c$  dans la jauge de Coulomb. Cette fonction permet de construire le hamiltonien de Breit, constitué des opérateurs de Gaunt et de Jauge, dans le formalisme de Dirac. Nous avons aussi montré qu'une diagonalisation du hamiltonien de Breit au second ordre en  $1/m$  permettait d'obtenir le hamiltonien de Breit-Pauli.

Le but premier de ce chapitre est de construire une théorie de champ moyen pour un système quantique non relativiste. Cependant, les résultats de la section précédente, montrant que les potentiels électromagnétiques, solutions des équations de Maxwell dans la jauge de Coulomb et dans l'approximation quasistatique, permettent de constituer, pour un système classique, une énergie électromagnétique d'interaction similaire au lagrangien de Darwin, invitent à quelques détours.

Plaçons nous dans un cadre d'étude quantique relativiste dans le formalisme de Dirac et considérons un système de  $N$  particules chargées en interaction mutuelle. Un électron quelconque décrit par un bispineur  $\Psi(\mathbf{x}, t)$  évolue selon l'équation de Dirac :

$$(c\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} - q\mathbf{A}(\mathbf{x}, t)) + q\Phi(\mathbf{x}, t)) \Psi(\mathbf{x}, t) = i\hbar\partial_t \Psi(\mathbf{x}, t), \quad (3.20)$$

et l'on suppose que les potentiels scalaire  $\Phi$  et vecteur  $\mathbf{A}$  sont créés par l'ensemble des charges selon les équations (3.18) et (3.19). Ils sont solutions des équations de Maxwell et reliés aux sources écrites

en formalisme de Dirac et respectant l'équation de conservation de la charge :

$$\begin{cases} \rho(\mathbf{x}, t) = \sum_{i=1}^N \Psi_i^\dagger(\mathbf{x}, t) \Psi_i(\mathbf{x}, t) \\ \mathbf{j}(\mathbf{x}, t) = \sum_{i=1}^N \Psi_i^\dagger(\mathbf{x}, t) \boldsymbol{\alpha} \Psi_i(\mathbf{x}, t) \end{cases} .$$

Les questions que l'on peut se poser sont les suivantes :

- En isolant les termes d'interaction rayonnement-matière impliquant  $\mathbf{A}(\mathbf{x}, t)$  et  $\Phi(\mathbf{x}, t)$  dans l'équation (3.20) est-il possible d'obtenir un terme d'interaction de champ moyen ressemblant vectoriellement au hamiltonien d'interaction de Breit ?
- Considérons un système de  $N$  électrons dont l'interaction est décrite par le terme de Coulomb et le terme de Breit. On peut envisager d'établir une théorie de champ moyen selon la méthode de dérivation des équations de Hartree en appliquant un principe variationnel. Quelle serait l'expression du champ moyen donné par le terme de Breit qui s'ajouterait au potentiel moyen de Hartree ?
- Les deux approches précédentes sont-elles équivalentes ?

On répond à l'ensemble de ces questions dans la section (3.3).

On retourne à présent à la description quantique non-relativiste au deuxième ordre en  $1/m$ . On souhaite réaliser une théorie de champ moyen incorporant l'ensemble des effets relativistes du second ordre en  $1/m$ , et auto-cohérente avec les équations de Maxwell. En ne considérant pour l'instant que les champs internes, un électron décrit par une fonction d'onde  $u(\mathbf{x}, t) \equiv u$  (spineur) évolue selon :

$$\begin{aligned} & \left( \frac{(\mathbf{p} - q\mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t))^2}{2m} + q\Phi_{int}(\mathbf{x}, t) - \frac{q\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B}_{int}(\mathbf{x}, t) - \frac{q\hbar^2}{8m^2 c^2} \nabla \cdot \mathbf{E}_{int}(\mathbf{x}, t) \right. \\ & \left. - \frac{q\hbar}{8m^2 c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E}_{int}(\mathbf{x}, t) \wedge (\mathbf{p} - q\mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t)) - (\mathbf{p} - q\mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t)) \wedge \mathbf{E}_{int}(\mathbf{x}, t)) \right) u = i\hbar \frac{\partial u}{\partial t} . \end{aligned} \quad (3.21)$$

Les potentiels scalaire  $\Phi_{int}(\mathbf{x}, t)$  et vecteur  $\mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t)$  sont toujours déterminés par les équations (3.18) et (3.19) **mais** les densités de charge  $\rho(\mathbf{x}, t)$  et de courant  $\mathbf{j}(\mathbf{x}, t)$  doivent être écrites dans le formalisme de la mécanique quantique non-relativiste et doivent être cohérentes avec le hamiltonien électronique utilisé.

On rappelle que pour une particule libre de fonction d'onde  $u(\mathbf{x}, t) \equiv u$ , la densité de charge s'écrit  $\rho(\mathbf{x}, t) = \rho^{(0)} = u^\dagger u$ . Cette expression respecte l'équation de continuité de la charge en y associant la densité de probabilité de courant bien connue :

$$\mathbf{j}(\mathbf{x}, t) = \frac{i\hbar}{2m} (u \nabla u^\dagger - u^\dagger \nabla u) .$$

Cette dernière expression doit être complétée en présence d'un champ électromagnétique représenté par un potentiel vecteur  $\mathbf{A}$ . On peut aussi ajouter un terme supplémentaire lié au courant de spin [22] :

$$\mathbf{j}(\mathbf{x}, t) = \frac{i\hbar}{2m} (u \nabla u^\dagger - u^\dagger \nabla u) - \frac{q}{m} \mathbf{A} u^\dagger u + \frac{\hbar}{2m} \nabla \wedge (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u) . \quad (3.22)$$

En définissant la densité selon  $\rho(\mathbf{x}, t) \equiv \rho^{(0)} = u^\dagger u$ , le terme (3.22) respecte toujours l'équation de continuité ( $\partial_t \rho + \nabla \cdot \mathbf{j} = 0$ ). Cette dernière équation n'est cependant valable qu'au premier ordre en

$1/m$ . Si l'on souhaite travailler à partir du hamiltonien de FW au deuxième ordre en  $1/m$ , il faut que la densité de charge et la densité de courant utilisées dans les équations (3.18) et (3.19) soient également développées au second ordre en  $1/m$ . Avant de réaliser une théorie de champ moyen incluant les effets relativistes au deuxième ordre en  $1/m$ , il faut parvenir à développer les sources selon :

$$\begin{cases} \rho(\mathbf{x}, t) = \rho^{(0)}(u^\dagger, u) + \rho^{(1)}(u^\dagger, u) + \rho^{(2)}(u^\dagger, u) + \vartheta(m^{-3}) \\ \mathbf{j}(\mathbf{x}, t) = \mathbf{j}^{(1)}(u^\dagger, u) + \mathbf{j}^{(2)}(u^\dagger, u) + \vartheta(m^{-3}) \end{cases} .$$

Ce travail est réalisé dans la section (3.2).

Ensuite, on sait que le hamiltonien d'interaction entre deux particules est donné par le hamiltonien de Breit-Pauli au second ordre en  $1/m$  et qu'il permet de mettre en évidence des interactions de type : contact, spin-orbite, spin-spin etc... Ainsi, des questions similaires au cas relativiste se posent :

- Si on isole les éléments d'interaction rayonnement-matière du hamiltonien (3.21), retrouve-t-on des termes qui ressemblent vectoriellement aux opérateurs présents dans le hamiltonien de Breit-Pauli ?
- Considérons un système de  $N$  électrons dont l'interaction est décrite par le hamiltonien de Breit-Pauli au second ordre en  $1/m$ . On peut également appliquer un principe variationnel selon la méthode de Hartree et regarder l'expression du champ moyen donné par les termes du hamiltonien de Breit-Pauli qui s'ajouteraient au potentiel moyen de Hartree ?
- Les deux approches précédentes sont-elles équivalentes ?

On tente de répondre à ces questions dans la section (3.4).

## 3.2 Développement des sources en puissance de $1/m$

« La vie est un pichet. »

C'est génial, non ?  
Presque Korn.

Dans la section (3.2.1) on exprime le développement des sources de densité de charge et de courant au deuxième ordre en  $1/m$  selon une méthode variationnelle présentée dans l'ouvrage *Mécanique Quantique* de L. Landau et E. Lifschitz [22]. On vérifie ensuite en section (3.2.2) que les termes obtenus obéissent à une équation de conservation de la charge électrique. On présente ensuite dans la section (3.2.3) les limites de la méthode variationnelle en montrant que la définition des termes sources est modifiée par le fait d'utiliser une transformation unitaire.

### 3.2.1 Approche variationnelle

Pour obtenir les expressions de la densité de charge et de la densité de courant relatives au hamiltonien transformé de FW au deuxième ordre en  $1/m$  on utilise une méthode variationnelle. Dans la référence [22], le calcul est réalisé au premier ordre en  $1/m$ ; nous étendons la procédure au second ordre en  $1/m$ . Le point de départ consiste à écrire l'énergie totale comme la somme d'une énergie cinétique pour la particule libre et d'une énergie potentielle d'interaction :

$$\langle H \rangle = \int u^\dagger H u d\tau = \langle T \rangle + \langle U_{em}(\Phi, \mathbf{A}) \rangle = \langle \frac{\mathbf{p}^2}{2m} \rangle + \langle H(\Phi, \mathbf{A}) \rangle ,$$

où le hamiltonien d'interaction s'écrit simplement  $H(\Phi, \mathbf{A}) = H - \frac{\mathbf{P}^2}{2m}$ . On peut également définir l'énergie moyenne d'interaction électromagnétique selon :

$$\langle U_{em} \rangle \equiv \int (\rho\Phi - \mathbf{j} \cdot \mathbf{A}) d\tau.$$

On considère que la variation élémentaire de l'énergie moyenne par rapport aux potentiels scalaire et vecteur s'identifie à la variation élémentaire de l'énergie volumique d'interaction rayonnement matière du système de charges et de courants :

$$\delta \langle H(\Phi, \mathbf{A}) \rangle = \delta \langle U_{em}(\Phi, \mathbf{A}) \rangle.$$

Cette variation élémentaire permet de définir les densités de charge et de courant :

$$\delta \langle H(\Phi, \mathbf{A}) \rangle \equiv \int u^\dagger \delta H(\Phi, \mathbf{A}) u d\tau \equiv \int \rho(u^\dagger, u) \delta\Phi d\tau - \int \mathbf{j}(u^\dagger, u) \cdot \delta\mathbf{A} d\tau. \quad (3.23)$$

Le hamiltonien est le hamiltonien de FW au deuxième ordre en  $1/m$  :

$$H = \frac{(\mathbf{p} - q\mathbf{A})^2}{2m} + q\Phi - \frac{q\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B} - \frac{q\hbar^2}{8m^2c^2} \nabla \cdot \mathbf{E} - \frac{q\hbar}{8m^2c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - q\mathbf{A}) - (\mathbf{p} - q\mathbf{A}) \wedge \mathbf{E}),$$

que l'on sépare en trois parties  $H^{(0)}$ ,  $H^{(1)}$  et  $H^{(2)}$  :

$$\begin{aligned} H^{(0)} &= H^{(0)}(\Phi) = q\Phi, \\ H^{(1)} &= H^{(1)}(\mathbf{A}) = -\frac{q}{2m} (\mathbf{p} \cdot \mathbf{A} + \mathbf{A} \cdot \mathbf{p}) + \frac{q^2}{m} \mathbf{A}^2 - \frac{q\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}), \\ H^{(2)} &= H^{(2)}(\Phi, \mathbf{A}) = -\frac{q\hbar^2}{8m^2c^2} \nabla \cdot \mathbf{E} - \frac{q\hbar}{8m^2c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - q\mathbf{A}) - (\mathbf{p} - q\mathbf{A}) \wedge \mathbf{E}). \end{aligned}$$

Pour obtenir une expression similaire à (3.23), il convient de séparer dans les trois parties les termes relatifs aux charges (variation  $\delta\Phi$ ) et ceux relatifs aux courants (variation  $\delta\mathbf{A}$ ). Le premier terme  $H^{(0)}$  ne contient qu'un terme impliquant  $\Phi$  et le deuxième  $H^{(1)}$  que des termes impliquant  $\mathbf{A}$ . Par contre,  $H^{(2)} = H^{(2)}(\Phi, \mathbf{A})$  dépend des deux variables, il faut alors prendre soin d'écrire :

$$\begin{aligned} \delta H(V, \mathbf{A}) &= \delta H^{(0)}(\Phi) + \delta H^{(1)}(\mathbf{A}) + \delta H^{(2)}(\Phi, \mathbf{A}) \\ &= h^{(0)}(\delta\Phi) + h^{(1)}(\delta\mathbf{A}) + h^{(2)}(\delta\Phi, \mathbf{A}) + h^{(2)}(\Phi, \delta\mathbf{A}). \end{aligned}$$

Ainsi on peut identifier les termes nécessaires aux calculs de  $\rho$  et  $\mathbf{j}$  :

$$\begin{aligned} \int u^\dagger (h^{(0)}(\delta\Phi) + h^{(2)}(\delta\Phi, \mathbf{A})) u d\tau &\equiv \int \rho(u^\dagger, u) \delta\Phi d\tau \\ &= \int q \left( \rho^{(0)}(u^\dagger, u) + \rho^{(2)}(u^\dagger, u) \right) \delta\Phi d\tau \quad (3.24) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \int u^\dagger (h^{(1)}(\delta\mathbf{A}) + h^{(2)}(\Phi, \delta\mathbf{A})) u d\tau &\equiv - \int \mathbf{j}(u^\dagger, u) \cdot \delta\mathbf{A} d\tau \\ &= - \int q \left( \mathbf{j}^{(1)}(u^\dagger, u) + \mathbf{j}^{(2)}(u^\dagger, u) \right) \cdot \delta\mathbf{A} d\tau. \quad (3.25) \end{aligned}$$

On exprime à présent la variation du hamiltonien en fonction de  $\delta\Phi$  et de  $\delta\mathbf{A}$ . La variation des deux premiers termes  $H^{(0)}$  et  $H^{(1)}$  donne facilement :

$$\delta H^{(0)}(\Phi) = h^{(0)}(\delta\Phi) = q\delta\Phi \quad (3.26)$$

$$\delta H^{(1)}(\mathbf{A}) = h^{(1)}(\delta\mathbf{A}) = -\frac{q}{2m} (\mathbf{p} \cdot \delta\mathbf{A} + \delta\mathbf{A} \cdot \mathbf{p}) + \frac{q^2}{m} \mathbf{A} \cdot \delta\mathbf{A} - \frac{q\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \wedge \delta\mathbf{A}). \quad (3.27)$$

En revanche  $H^{(2)}(\Phi, \mathbf{A})$  se présente sous la forme  $H^{(2)}(\mathbf{E}, \mathbf{A})$  que l'on exprime d'abord en fonction de  $\delta\mathbf{E}$  et  $\delta\mathbf{A}$  ce qui donne :

$$\begin{aligned} \delta H^{(2)}(\Phi, \mathbf{A}) = h^{(2)}(\delta\Phi, \delta\mathbf{A}) &= -\frac{q\hbar^2}{8m^2c^2} \nabla \cdot \delta\mathbf{E} - \frac{q\hbar}{8m^2c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\delta\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - q\mathbf{A}) - (\mathbf{p} - q\mathbf{A}) \wedge \delta\mathbf{E}) \\ &\quad - \frac{q\hbar}{8m^2c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (-q\delta\mathbf{A}) - (-q\delta\mathbf{A}) \wedge \mathbf{E}). \end{aligned} \quad (3.28)$$

Ensuite, avec la définition du champ électrique  $\mathbf{E} = -\nabla\Phi - \frac{\partial}{\partial t}\mathbf{A}$ , on peut dire que la variation élémentaire  $\delta\mathbf{E}$  s'écrit  $\delta\mathbf{E} = -\nabla\delta\Phi - \partial_t\delta\mathbf{A}$ . Ainsi, les deux termes de (3.28) apportent chacun une contribution pour  $\delta\Phi$  et  $\delta\mathbf{A}$  ce qui donne finalement :

$$h^{(2)}(\delta\Phi, \mathbf{A}) = \frac{q\hbar}{8m^2c^2} (\hbar\Delta\delta\Phi + \boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla\delta\Phi \wedge (\mathbf{p} - q\mathbf{A}) - (\mathbf{p} - q\mathbf{A}) \wedge \nabla\delta\Phi)) \quad (3.29)$$

$$\begin{aligned} h^{(2)}(\Phi, \delta\mathbf{A}) &= \frac{q\hbar}{8m^2c^2} (\hbar\nabla \cdot \partial_t\delta\mathbf{A} + \boldsymbol{\sigma} \cdot (\partial_t\delta\mathbf{A} \wedge (\mathbf{p} - q\mathbf{A}) - (\mathbf{p} - q\mathbf{A}) \wedge \partial_t\delta\mathbf{A}) \\ &\quad - \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (-q\delta\mathbf{A}) - (-q\delta\mathbf{A}) \wedge \mathbf{E})). \end{aligned} \quad (3.30)$$

Or, à l'aide des hypothèses initiales du problème (jauge de Coulomb et approximation quasistatique), on peut négliger les deux premiers termes de l'expression (3.30) qui devient :

$$h^{(2)}(\Phi, \delta\mathbf{A}) \approx \frac{q^2\hbar}{8m^2c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge \delta\mathbf{A} - \delta\mathbf{A} \wedge \mathbf{E}). \quad (3.31)$$

On justifie le passage de (3.30) à (3.31) de la manière suivante :

1. le premier terme dans (3.30) est nul en **jauge de Coulomb** :

$$\nabla \cdot \partial_t\delta\mathbf{A} = \delta\partial_t\nabla \cdot \mathbf{A} = 0.$$

2. le second terme représenté par l'opérateur  $\boldsymbol{\sigma} \cdot (\partial_t\delta\mathbf{A} \wedge (\mathbf{p} - q\mathbf{A}))$  est négligeable devant le troisième terme représenté par  $\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (-q\delta\mathbf{A}))$  dans le cadre de l'**approximation quasistatique**. En effet si on évalue le rapport entre les deux en tenant compte des arguments qualitatifs suivants :

- i)  $E \approx cB$

- ii)  $\mathbf{B} = \nabla \wedge \mathbf{A} \implies B \approx \frac{A}{L}$ , on obtient :

$$\frac{\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge -q\delta\mathbf{A})}{-\boldsymbol{\sigma} \cdot (\partial_t\delta\mathbf{A} \wedge \mathbf{p} - q\mathbf{A})} \approx \frac{\mathbf{E}(\delta\mathbf{A})}{(\partial_t\delta\mathbf{A})\mathbf{A}} \approx \frac{cA(\delta A)}{L(\partial_t\delta\mathbf{A})A} \approx \frac{c(\delta A)}{L(\partial_t\delta\mathbf{A})}. \quad (3.32)$$

Ce rapport obtenu est en fait identique à celui obtenu dans l'hypothèse quasistatique  $\Delta\mathbf{A} \gg \frac{\partial^2}{c^2\partial t^2}\mathbf{A}$ , en effet :

$$\Delta\mathbf{A} \gg \frac{\partial^2}{c^2\partial t^2}\mathbf{A} \iff \frac{(\delta A)}{L^2} \gg \frac{(\partial_t\delta\mathbf{A})}{c^2T} \iff \frac{(\delta A)}{L} \gg \frac{(\partial_t\delta\mathbf{A})}{c} \iff \frac{c(\delta A)}{L(\partial_t\delta\mathbf{A})} \gg 1. \quad (3.33)$$

D'après (3.32) et (3.33) on obtient bien  $\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (-q\delta\mathbf{A})) \gg \boldsymbol{\sigma} \cdot (\partial_t\delta\mathbf{A} \wedge (\mathbf{p} - q\mathbf{A}))$ . Les deux derniers points justifient bien (3.31).

Ainsi, en remplaçant  $h^{(0)}(\delta\Phi)$  par (3.26),  $h^{(1)}(\delta\mathbf{A})$  par (3.27),  $h^{(2)}(\delta\Phi, \mathbf{A})$  par (3.29), et  $h^{(2)}(\Phi, \delta\mathbf{A})$  par (3.31) on peut préciser les définitions (3.24) et (3.25) au second ordre en notant la densité de

charge  $q\rho(u^\dagger, u)$  et la densité de courant  $q\mathbf{j}(u^\dagger, u)$  :

$$(3.24) \quad = \int u^\dagger \left( q\delta\Phi + \frac{q\hbar^2}{8m^2c^2}\Delta\delta\Phi + \frac{q\hbar}{8m^2c^2}\boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla\delta\Phi \wedge (\mathbf{p} - q\mathbf{A}) - (\mathbf{p} - q\mathbf{A}) \wedge \nabla\delta\Phi) \right) u d\tau$$

$$\equiv \int q \left( \rho^{(0)}(u^\dagger, u) + \rho^{(2)}(u^\dagger, u) \right) \delta\Phi d\tau \quad (3.34)$$

$$(3.25) \quad = \int u^\dagger \left( -\frac{q}{2m}(\mathbf{p} \cdot \delta\mathbf{A} + \delta\mathbf{A} \cdot \mathbf{p}) + \frac{q^2}{m}\mathbf{A} \cdot \delta\mathbf{A} - \frac{q\hbar}{2m}\boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \wedge \delta\mathbf{A}) + \frac{q^2\hbar}{8m^2c^2}\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge \delta\mathbf{A} - \delta\mathbf{A} \wedge \mathbf{E}) \right) u d\tau$$

$$\equiv -\int q \left( \mathbf{j}^{(1)}(u^\dagger, u) + \mathbf{j}^{(2)}(u^\dagger, u) \right) \cdot \delta\mathbf{A} d\tau. \quad (3.35)$$

### Détermination de la densité de charge

Pour établir l'expression de la densité de charge on cherche d'abord à factoriser l'ensemble des termes par  $\delta\Phi$  dans (3.34). Les deux premiers ne posent pas de problème. Le dernier terme se transforme par application d'une fonction d'onde  $u$  puis en remarquant que  $\nabla \wedge (\nabla\delta\Phi) = 0$  :

$$\begin{aligned} (\nabla\delta\Phi \wedge (\mathbf{p} - q\mathbf{A}) - (\mathbf{p} - q\mathbf{A}) \wedge \nabla\delta\Phi) u &= 2\nabla\delta\Phi \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A})u + i\hbar\nabla(\wedge\nabla\delta\Phi)u \\ &= -2(\mathbf{p} - q\mathbf{A})u \wedge \nabla\delta\Phi. \end{aligned}$$

On obtient donc le développement suivant :

$$(3.34) \quad = \int u^\dagger \left( q + \frac{q\hbar^2}{8m^2c^2}\Delta - \frac{q\hbar}{4m^2c^2}\boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{p} - q\mathbf{A}) \wedge \nabla \right) u \delta\Phi d\tau$$

$$= \int \left( qu^\dagger u + u^\dagger u \frac{q\hbar^2}{8m^2c^2}\Delta - \frac{q\hbar}{4m^2c^2}u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{p} - q\mathbf{A})u \wedge \nabla \right) \delta\Phi d\tau$$

$$\equiv \int q \left( \rho^{(0)}(u^\dagger, u) + \rho^{(2)}(u^\dagger, u) \right) \delta\Phi d\tau,$$

d'où on déduit l'expression usuelle de la densité  $\rho^{(0)}$  ainsi que l'expression de la correction  $\rho^{(2)}$  au second ordre en  $(1/m)$  :

$$\rho^{(0)}(u^\dagger, u) = u^\dagger u \quad (3.36)$$

$$\rho^{(2)}(u^\dagger, u) = u^\dagger u \frac{\hbar^2}{8m^2c^2}\Delta - \frac{\hbar}{4m^2c^2}u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{p} - q\mathbf{A})u \wedge \nabla. \quad (3.37)$$

La forme (3.37) paraît surprenante car elle présente des opérateurs à droite. On verra cependant dans les sections (3.2.2) et (3.4) qu'elle permet d'obtenir des résultats intéressants.

### Détermination de la densité de courant

Le même raisonnement est appliqué pour déterminer la densité de courant. On transforme les expressions des valeurs moyennes des opérateurs correspondants aux quatre termes de l'équation (3.35). Les deux premiers s'obtiennent en réalisant des intégrations par parties et les deux derniers se calculent

plus facilement :

$$\begin{aligned}
 \int (u^\dagger \mathbf{p} \cdot \delta \mathbf{A} u + u^\dagger \delta \mathbf{A} \mathbf{p} u) d\tau &= -i\hbar \int u^\dagger \nabla (\delta \mathbf{A} u) d\tau - i\hbar \int u^\dagger \delta \mathbf{A} \cdot \nabla u d\tau \\
 &= -i\hbar \underbrace{\int \nabla (u^\dagger \delta \mathbf{A} u) d\tau}_0 + i\hbar \int \delta \mathbf{A} u \nabla u^\dagger d\tau - i\hbar \int u^\dagger \delta \mathbf{A} \nabla u d\tau \\
 &= i\hbar \int \delta \mathbf{A} \cdot (u \nabla u^\dagger - u^\dagger \nabla u) d\tau \\
 \int u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \wedge \delta \mathbf{A}) u d\tau &= \int u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u \cdot (\nabla \wedge \delta \mathbf{A}) d\tau \\
 &= - \underbrace{\int \nabla (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u \wedge \delta \mathbf{A}) d\tau}_0 + \int \delta \mathbf{A} \cdot \nabla \wedge (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u) d\tau \\
 &= \int \delta \mathbf{A} \cdot \nabla \wedge (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u) \\
 \int u^\dagger \mathbf{A} \delta \mathbf{A} u d\tau &= \int \delta \mathbf{A} \cdot u^\dagger u \mathbf{A} d\tau \\
 \int u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge \delta \mathbf{A} - \delta \mathbf{A} \wedge \mathbf{E}) u d\tau &= \int (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u) \cdot (\mathbf{E} \wedge \delta \mathbf{A} - \delta \mathbf{A} \wedge \mathbf{E}) d\tau \\
 &= \int \delta \mathbf{A} \cdot 2(u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u \wedge \mathbf{E}) d\tau.
 \end{aligned}$$

En tenant compte des coefficients présents devant chaque opérateur on peut factoriser par  $\delta \mathbf{A}$  l'ensemble des termes dans l'intégrale :

$$\begin{aligned}
 (3.35) &= \int \delta \mathbf{A} \cdot \left( -\frac{qi\hbar}{2m} (u \nabla u^\dagger - u^\dagger \nabla u) + \frac{q^2}{m} u^\dagger u \mathbf{A} - \frac{q\hbar}{2m} \nabla \wedge (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u) + \frac{q^2 \hbar}{4m^2 c^2} (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u \wedge \mathbf{E}) \right) d\tau \\
 &\equiv - \int q \left( \mathbf{j}^{(1)}(u^\dagger, u) + \mathbf{j}^{(2)}(u^\dagger, u) \right) \cdot \delta \mathbf{A} d\tau,
 \end{aligned}$$

ce qui permet d'identifier l'expression du vecteur densité de courant au premier et deuxième ordre en  $(1/m)$  :

$$\mathbf{j}^{(1)}(u^\dagger, u) = \frac{i\hbar}{2m} (u \nabla u^\dagger - u^\dagger \nabla u) - \frac{q}{m} \mathbf{A} u^\dagger u + \frac{\hbar}{2m} \nabla \wedge (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u) \quad (3.38)$$

$$\mathbf{j}^{(2)}(u^\dagger, u) = -\frac{q\hbar}{4m^2 c^2} (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u \wedge \mathbf{E}). \quad (3.39)$$

L'expression (3.39) correspond à une correction provenant de l'interaction spin-orbite. On peut remarquer que ce terme correspond à un courant du à la correction de l'impulsion généralisée au second ordre en  $1/m$  établie dans la section (1.5.2) :

$$\mathbf{j}^{(2)}(u^\dagger, u) = -\frac{q\hbar}{4m^2 c^2} (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u \wedge \mathbf{E}) = u^\dagger \frac{\partial \mathbf{r}^{(2)}}{\partial t} u = u^\dagger \left( \frac{i}{\hbar} [H^{(2)}, \mathbf{r}] + \frac{\partial \mathbf{r}}{\partial t} \right) u.$$

Il est donc tout à fait naturel de le retrouver ici. On utilisera cette expression dans la section (5.3.2) pour établir un courant macroscopique pouvant intervenir dans les théories de magnéto-optique.

### 3.2.2 Equation de continuité

A présent, on cherche à savoir dans quelle mesure, la densité de charge  $\rho = \rho^{(0)} + \rho^{(2)}$  et le vecteur densité de courant  $\mathbf{j} = \mathbf{j}^{(1)} + \mathbf{j}^{(2)}$  respectent bien une équation de continuité du type :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{j} = 0.$$

On choisit donc de calculer la dérivée temporelle de  $\rho = \rho^{(0)} + \rho^{(2)}$ , en utilisant l'équation de Schrödinger pour faire apparaître un courant et le comparer à  $\mathbf{j} = \mathbf{j}^{(1)} + \mathbf{j}^{(2)}$ . Le calcul conduit au résultat suivant :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho}{\partial t} &= \frac{\partial}{\partial t} (\rho^{(0)} + \rho^{(2)}) = \frac{\partial}{\partial t} (u^\dagger u + \rho^{(2)}) = \left( u^\dagger \frac{\partial u}{\partial t} + u \frac{\partial u^\dagger}{\partial t} \right) + \frac{\partial}{\partial t} \rho^{(2)} \\ &= \frac{1}{i\hbar} \left( u^\dagger \left( H^{(0)} + H^{(1)} + H^{(2)} \right) u - u \left( H^{(0)\dagger} + H^{(1)\dagger} + H^{(2)\dagger} \right) u^\dagger \right) + \frac{\partial}{\partial t} \rho^{(2)}. \end{aligned}$$

On traite en premier lieu la contribution de la densité  $\rho^{(0)}$  avec les trois parties du hamiltonien  $H^{(0)}$ ,  $H^{(1)}$  et  $H^{(2)}$ . La partie relative au terme  $\rho^{(2)}$  est traitée plus loin.

#### Contribution du terme $\rho^{(0)}$

On remarque tout d'abord qu'à l'ordre zéro en  $1/m$ , il n'y a pas de courant. En effet :

$$\frac{1}{i\hbar} \left( u^\dagger H^{(0)} u - u H^{(0)\dagger} u^\dagger \right) = \frac{1}{i\hbar} \left( u^\dagger q\Phi u - u q\Phi u^\dagger \right) = 0.$$

Au premier ordre en  $1/m$  on précise les expressions du hamiltonien  $H^{(1)}$  et de son opérateur adjoint  $H^{(1)\dagger}$  :

$$\begin{aligned} H^{(1)} &= -\frac{\hbar^2}{2m} \Delta + \frac{iq\hbar}{2m} (\nabla \cdot \mathbf{A} + \mathbf{A} \cdot \nabla) + \frac{q^2 \mathbf{A}^2}{2m} - \frac{q\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}) \\ H^{(1)\dagger} &= -\frac{\hbar^2}{2m} \Delta - \frac{iq\hbar}{2m} (\nabla \cdot \mathbf{A} + \mathbf{A} \cdot \nabla) + \frac{q^2 \mathbf{A}^2}{2m} - \frac{q\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}). \end{aligned}$$

Ainsi, la contribution des termes du premier ordre donne :

$$\frac{1}{i\hbar} \left( u^\dagger H^{(1)} u - u H^{(1)\dagger} u^\dagger \right) = \frac{1}{i\hbar} \left( -u^\dagger \frac{\hbar^2}{2m} \Delta u + u \frac{\hbar^2}{2m} \Delta u^\dagger \right) \quad (3.40)$$

$$+ \frac{iq\hbar}{2m} \left( u^\dagger \nabla u \cdot \mathbf{A} + \mathbf{A} \cdot u^\dagger \nabla u + u \nabla \cdot \mathbf{A} u^\dagger + u \mathbf{A} \cdot \nabla u^\dagger \right) \quad (3.41)$$

$$+ \frac{q^2}{2m} \left( u^\dagger \mathbf{A}^2 u - u \mathbf{A}^2 u^\dagger \right) \quad (3.42)$$

$$+ \frac{-q\hbar}{2m} \left( u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}) u - u \boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}) u^\dagger \right). \quad (3.43)$$

Le terme (3.40) est bien connu, il s'écrit :

$$(3.40) = \frac{1}{i\hbar} \left( -u^\dagger \frac{\hbar^2}{2m} \Delta u + u \frac{\hbar^2}{2m} \Delta u^\dagger \right) = -\nabla \cdot \left( \frac{i\hbar}{2m} (u \nabla u^\dagger - u^\dagger \nabla u) \right). \quad (3.44)$$

Le terme (3.41) peut se développer selon :

$$\begin{aligned}
(3.41) &= \frac{iq\hbar}{2mi\hbar} (u^\dagger \nabla(u \cdot \mathbf{A}) + u^\dagger \mathbf{A} \cdot \nabla u + u \nabla(u^\dagger \cdot \mathbf{A}) + u \mathbf{A} \cdot \nabla u^\dagger) \\
&= \frac{q}{2m} (u^\dagger u \nabla \cdot \mathbf{A} + u^\dagger \mathbf{A} \cdot \nabla u + u^\dagger \mathbf{A} \cdot \nabla u + uu^\dagger \cdot \nabla(\mathbf{A}) + u \mathbf{A} \cdot \nabla u^\dagger + u \mathbf{A} \cdot \nabla u^\dagger) \\
&= \frac{q}{2m} (2u^\dagger u \nabla \cdot \mathbf{A} + 2u^\dagger \mathbf{A} \cdot \nabla u + 2u \mathbf{A} \cdot \nabla u^\dagger) = \frac{ie\hbar}{m} (u^\dagger u \nabla \cdot \mathbf{A} + \mathbf{A} \cdot \nabla u^\dagger u) \\
&= -\nabla \cdot \left( -\frac{q}{m} u^\dagger u \mathbf{A} \right). \tag{3.45}
\end{aligned}$$

Le terme (3.42) est évidemment nul ainsi que le terme (3.43) contenant le spin car  $(\nabla \wedge \mathbf{A})$  est un vecteur et  $\boldsymbol{\sigma}$  agit sur  $u$  :

$$\begin{aligned}
(3.43) &= u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}) u - u \boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}) u^\dagger = u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}) - u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}) \\
&= u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}) - u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}) = 0.
\end{aligned}$$

Au **deuxième ordre** en  $1/m$ , le hamiltonien  $H^{(2)}$  et son opérateur adjoint  $H^{(2)\dagger}$  s'écrivent :

$$\begin{aligned}
H^{(2)} &= -\frac{q\hbar^2}{8m^2c^2} \nabla \cdot \mathbf{E} - \frac{q\hbar}{8m^2c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (-i\hbar \nabla - q\mathbf{A}) - (-i\hbar \nabla - q\mathbf{A}) \wedge \mathbf{E}) \\
H^{(2)\dagger} &= -\frac{q\hbar^2}{8m^2c^2} \nabla \cdot \mathbf{E} - \frac{q\hbar}{8m^2c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (i\hbar \nabla - q\mathbf{A}) - (i\hbar \nabla - q\mathbf{A}) \wedge \mathbf{E}).
\end{aligned}$$

L'ensemble des contributions des termes du second ordre se décompose en trois termes, donnés par l'équation suivante :

$$\frac{1}{i\hbar} (u^\dagger H^{(2)} u - u H^{(2)\dagger} u^\dagger) = \frac{1}{i\hbar} \left( \frac{-q\hbar^2}{8m^2c^2} (u^\dagger (\nabla \cdot \mathbf{E}) u - u (\nabla \cdot \mathbf{E}) u^\dagger) \right. \tag{3.46}$$

$$\begin{aligned}
&+ \frac{-q\hbar}{8m^2c^2} (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (-i\hbar \nabla) - (-i\hbar \nabla) \wedge \mathbf{E}) u \\
&\quad - u \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (i\hbar \nabla) - (i\hbar \nabla) \wedge \mathbf{E}) u^\dagger) \tag{3.47}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
&+ \frac{-q\hbar}{8m^2c^2} (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (-q\mathbf{A}) - (-q\mathbf{A}) \wedge \mathbf{E}) u \\
&\quad - u \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (-q\mathbf{A}) - (-q\mathbf{A}) \wedge \mathbf{E}) u^\dagger) \tag{3.48}
\end{aligned}$$

Le terme (3.46) est nul car  $(\nabla \cdot \mathbf{E})$  est un scalaire. Le terme (3.48) donne également une contribution nulle :

$$\begin{aligned}
(3.48) &= u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (-q\mathbf{A}) - (-q\mathbf{A}) \wedge \mathbf{E}) u - u \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (-q\mathbf{A}) - (-q\mathbf{A}) \wedge \mathbf{E}) u^\dagger \\
&= -q(u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge \mathbf{A} - \mathbf{A} \wedge \mathbf{E}) u - \boldsymbol{\sigma} u \cdot (\mathbf{E} \wedge \mathbf{A} - \mathbf{A} \wedge \mathbf{E}) u^\dagger) \\
&= -2q(u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u \cdot (\mathbf{E} \wedge \mathbf{A}) - u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u \cdot (\mathbf{E} \wedge \mathbf{A})) = 0. \tag{3.49}
\end{aligned}$$

Pour l'élément (3.47) on réalise le développement suivant où l'on utilise pour passer de (3.50) à (3.51) l'identité suivante :

$$-u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \wedge (\nabla u) + (\nabla u^\dagger) \wedge \boldsymbol{\sigma} u = \nabla \wedge (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u).$$

Cette identité est prouvée à la fin de la section. Le terme (3.47) se développe :

$$\begin{aligned}
(3.47) &= \frac{-q\hbar}{i\hbar 8m^2c^2} (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (-i\hbar \nabla) - (-i\hbar \nabla) \wedge \mathbf{E})u - u \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (i\hbar \nabla) - (i\hbar \nabla) \wedge \mathbf{E})u^\dagger) \\
&= \frac{q\hbar}{8m^2c^2} (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge \nabla u - \nabla \wedge (\mathbf{E}u)) - (-\mathbf{E} \wedge \nabla u^\dagger + \nabla \wedge (\mathbf{E}u^\dagger)) \cdot \boldsymbol{\sigma}u) \\
&= \frac{q\hbar}{8m^2c^2} (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot (2\mathbf{E} \wedge (\nabla u) - (\nabla \wedge \mathbf{E})u) - (-2\mathbf{E} \wedge (\nabla u^\dagger) + (\nabla \wedge \mathbf{E})u^\dagger) \cdot \boldsymbol{\sigma}u) \\
&= \frac{q\hbar}{8m^2c^2} (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot (2\mathbf{E} \wedge (\nabla u)) - u^\dagger \boldsymbol{\sigma}u \cdot (\nabla \wedge \mathbf{E}) + (2\mathbf{E} \wedge (\nabla u^\dagger)) \cdot \boldsymbol{\sigma}u - u^\dagger \boldsymbol{\sigma}u \cdot (\nabla \wedge \mathbf{E})) \\
&= \frac{q\hbar}{4m^2c^2} (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (\nabla u)) + (\mathbf{E} \wedge (\nabla u^\dagger)) \cdot \boldsymbol{\sigma}u - u^\dagger \boldsymbol{\sigma}u \cdot (\nabla \wedge \mathbf{E})) \\
&= \frac{q\hbar}{4m^2c^2} (-\mathbf{E} \cdot (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \wedge (\nabla u)) + \mathbf{E} \cdot ((\nabla u^\dagger) \wedge \boldsymbol{\sigma}u) - u^\dagger \boldsymbol{\sigma}u \cdot (\nabla \wedge \mathbf{E})) \tag{3.50}
\end{aligned}$$

$$= \frac{q\hbar}{4m^2c^2} (\mathbf{E} \cdot \nabla \wedge (u^\dagger \boldsymbol{\sigma}u) - u^\dagger \boldsymbol{\sigma}u \cdot (\nabla \wedge \mathbf{E})) \tag{3.51}$$

$$= -\nabla \cdot \left( -\frac{q\hbar}{4m^2c^2} u^\dagger \boldsymbol{\sigma}u \wedge \mathbf{E} \right). \tag{3.52}$$

Ainsi en regroupant les équations (3.44), (3.45) et (3.52) on obtient l'équation de conservation suivante :

$$\frac{\partial \rho^{(0)}}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{j}^{(1)} + \mathbf{j}^{(2)}) = 0,$$

avec les expressions suivantes pour la densité de courant  $\mathbf{j}^{(1)}$  au premier ordre en  $1/m$  et la densité de courant  $\mathbf{j}^{(2)}$  au second ordre en  $1/m$  :

$$\begin{aligned}
\mathbf{j}^{(1)} &= \frac{i\hbar}{2m} (u \nabla u^\dagger - u^\dagger \nabla u) - \frac{q}{m} \mathbf{A} u^\dagger u \\
\mathbf{j}^{(2)} &= -\frac{q\hbar}{4m^2c^2} u^\dagger \boldsymbol{\sigma}u \wedge \mathbf{E}.
\end{aligned}$$

On peut remarquer que l'expression de  $\mathbf{j}^{(1)}$  ne contient pas le courant de spin  $\frac{\hbar}{2m} \nabla \wedge (u^\dagger \boldsymbol{\sigma}u)$ . La méthode de détermination de la densité de courant par l'équation de continuité ne permet pas de faire apparaître cet opérateur comme le permet la méthode variationnelle de la section (3.2.1). Or, ce dernier terme peut être ajouté sans problème dans l'expression de  $\mathbf{j}^{(1)}$  car en lui appliquant l'opérateur divergence, la relation de continuité n'est pas modifiée au vu de la propriété  $\nabla \cdot (\nabla \wedge (u^\dagger \boldsymbol{\sigma}u)) = 0$ .

### Contribution du terme $\rho^{(2)}$

Regardons à présent les effets de la correction de la densité  $\rho^{(2)}$  au second ordre en  $1/m$ . On rappelle son expression :

$$\rho^{(2)}(u^\dagger, u) = u^\dagger u \frac{\hbar^2}{8m^2c^2} \Delta - \frac{\hbar}{4m^2c^2} u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{p} - q\mathbf{A})u \wedge \nabla.$$

Le calcul de la dérivée temporelle donne :

$$\begin{aligned}
\frac{\partial}{\partial t} \rho^{(2)} &= \frac{\partial}{\partial t} \left( u^\dagger u \frac{\hbar^2}{8m^2c^2} \Delta - \frac{\hbar}{4m^2c^2} u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{p} - q\mathbf{A})u \wedge \nabla \right) \\
&= \left( \left( \frac{\partial}{\partial t} u^\dagger \right) u \frac{\hbar^2}{8m^2c^2} \Delta + u^\dagger \left( \frac{\partial}{\partial t} u \right) \frac{\hbar^2}{8m^2c^2} \Delta - \frac{\hbar}{4m^2c^2} \left( \frac{\partial}{\partial t} u^\dagger \right) \boldsymbol{\sigma} \cdot ((\mathbf{p} - q\mathbf{A})u \wedge \nabla) \right. \\
&\quad \left. - \frac{\hbar}{4m^2c^2} u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( (\mathbf{p} - q\mathbf{A}) \left( \frac{\partial}{\partial t} u \right) \wedge \nabla \right) + \frac{q\hbar}{4m^2c^2} u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \left( \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} \right) u \wedge \nabla \right) \right).
\end{aligned}$$

Etant donné que l'on ne conserve que les termes du second ordre en  $1/m$ , les dérivées temporelles  $\partial_t u$  et  $\partial_t u^\dagger$  sont remplacées respectivement par les quantités :

$$\begin{cases} \partial_t u = \frac{Hu}{i\hbar} = \frac{H^{(0)}u}{i\hbar} = \frac{q\Phi u}{i\hbar} \\ \partial_t u^\dagger = -\frac{H^\dagger u^\dagger}{i\hbar} = -\frac{H^{(0)\dagger} u^\dagger}{i\hbar} = -\frac{q\Phi u^\dagger}{i\hbar} \end{cases} .$$

La contribution des termes d'ordres supérieurs est négligée. Le calcul se poursuit et on regroupe les éléments en trois types de termes :

$$\frac{\partial \rho^{(2)}}{\partial t} = \left( -\frac{q\Phi u^\dagger}{i\hbar} u \frac{\hbar^2}{8m^2 c^2} \Delta + u^\dagger \frac{q\Phi u}{i\hbar} \frac{\hbar^2}{8m^2 c^2} \Delta \right) \quad (3.53)$$

$$- \frac{\hbar}{4m^2 c^2} \left( \left( -\frac{q\Phi u^\dagger}{i\hbar} \right) \boldsymbol{\sigma} \cdot ((\mathbf{p} - q\mathbf{A})u \wedge \nabla) + u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( (\mathbf{p} - q\mathbf{A}) \left( \frac{q\Phi u}{i\hbar} \right) \wedge \nabla \right) \right) \quad (3.54)$$

$$+ \frac{e\hbar}{4m^2 c^2} u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \left( \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} \right) u \wedge \nabla \right). \quad (3.55)$$

Le premier terme (3.53) est nul comme on peut le montrer facilement :

$$(3.53) = -\frac{q\Phi u^\dagger}{i\hbar} u \frac{\hbar^2}{8m^2 c^2} \Delta + u^\dagger \frac{q\Phi u}{i\hbar} \frac{\hbar^2}{8m^2 c^2} \Delta = 0.$$

Le terme (3.54) est développé de la manière suivante :

$$\begin{aligned} (3.54) &= -\frac{\hbar}{4m^2 c^2} \left( \left( -\frac{q\Phi u^\dagger}{i\hbar} \right) \boldsymbol{\sigma} \cdot ((\mathbf{p} - q\mathbf{A})u \wedge \nabla) + u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( (\mathbf{p} - q\mathbf{A}) \left( \frac{q\Phi u}{i\hbar} \right) \wedge \nabla \right) \right) \\ &= \frac{q}{i4m^2 c^2} \left( \underbrace{\Phi u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot ((\mathbf{p}u) \wedge \nabla) - u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{p}(u\Phi) \wedge \nabla) + \Phi u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot ((-q\mathbf{A}u) \wedge \nabla) - u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot (-q\mathbf{A}u\Phi) \wedge \nabla}_0 \right) \\ &= -\frac{q\hbar}{4m^2 c^2} \left( \underbrace{\Phi u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot ((\nabla u) \wedge \nabla) - u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot ((\nabla u)\Phi \wedge \nabla)}_0 - u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot (u(\nabla\Phi) \wedge \nabla) \right) \\ &= \frac{q\hbar}{4m^2 c^2} u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u \cdot ((\nabla\Phi) \wedge \nabla). \end{aligned} \quad (3.56)$$

On additionne ensuite (3.56) et (3.55) :

$$\begin{aligned} (3.56) + (3.55) &= \frac{q\hbar}{4m^2 c^2} u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u \cdot ((\nabla\Phi) \wedge \nabla) + \frac{q\hbar}{4m^2 c^2} u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \left( \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} \right) u \wedge \nabla \right) \\ &= -\frac{q\hbar}{4m^2 c^2} u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u \cdot \left( \left( -\nabla\Phi - \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} \right) \wedge \nabla \right) = -\frac{q\hbar}{4m^2 c^2} u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u \cdot (\mathbf{E} \wedge \nabla) \\ &= -\nabla \cdot \left( \frac{q\hbar}{4m^2 c^2} (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u \wedge \mathbf{E}) \right) = -\nabla \cdot (-\mathbf{j}^{(2)}). \end{aligned} \quad (3.57)$$

On obtient finalement l'équation surprenante suivante :

$$\frac{\partial \rho^{(2)}}{\partial t} + \nabla \cdot (-\mathbf{j}^{(2)}) = 0. \quad (3.58)$$

### Conclusions et résumé :

Après l'étude des sections (3.2.1) et (3.2.2), plusieurs commentaires s'imposent.

- Nous avons utilisé deux méthodes différentes pour obtenir l'expression des densités de charge et de courant. La première, développée dans l'ouvrage de L. Landau [22] permet de déterminer  $\rho^{(0)}$ ,  $\rho^{(2)}$ ,  $\mathbf{j}^{(1)}$  et  $\mathbf{j}^{(2)}$ . La seconde, obtenue en utilisant l'équation de continuité, nous permet de retrouver une partie de  $\mathbf{j}^{(1)}$ ,  $\mathbf{j}^{(2)}$  connaissant  $\rho^{(0)}$ . Elle ne nous permet pas a priori de retrouver l'expression de  $\rho^{(2)}$ . Cependant, cette dernière méthode permet de vérifier des équations de conservation de la charge qui ne sont a priori pas assurées par la méthode variationnelle.
- Les deux méthodes ne permettent pas d'obtenir la même expression du courant et les termes obtenus à partir du hamiltonien de FW ne proviennent pas des mêmes opérateurs. Notons  $\mathbf{j}_{Landau}(u^\dagger, u)$  l'expression du courant total obtenu par la méthode variationnelle. Il est donné par l'expression suivante (section (3.2.1)) et l'on précise entre crochets l'origine des différents termes :

$$\mathbf{j}_{Landau}(u^\dagger, u) = \underbrace{\frac{i\hbar}{2m} (u\nabla u^\dagger - u^\dagger\nabla u)}_{(\mathbf{p}\cdot\delta\mathbf{A} + \delta\mathbf{A}\mathbf{p})} - \underbrace{\frac{q}{m} \mathbf{A}u^\dagger u}_{\mathbf{A}\delta\mathbf{A}} + \underbrace{\frac{\hbar}{2m} \nabla \wedge (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u)}_{\boldsymbol{\sigma}\cdot(\nabla \wedge \delta\mathbf{A})} - \underbrace{\frac{q\hbar}{4m^2 c^2} u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u \wedge \mathbf{E}}_{\boldsymbol{\sigma}\cdot(\mathbf{E} \wedge \delta\mathbf{A} - \delta\mathbf{A} \wedge \mathbf{E})}.$$

La méthode utilisant l'équation de continuité obtenue par le calcul de  $\partial_t \rho^{(0)}$  et le hamiltonien  $H^{FW}$  au deuxième ordre, permet de déterminer le courant total  $\mathbf{j}_{continuite}(u^\dagger, u)$  suivant :

$$\mathbf{j}_{continuite}(u^\dagger, u) = \underbrace{\frac{i\hbar}{2m} (u\nabla u^\dagger - u^\dagger\nabla u)}_{\frac{\mathbf{p}^2}{2m}} - \underbrace{\frac{q}{m} \mathbf{A}u^\dagger u}_{\mathbf{p}\cdot\mathbf{A} + \mathbf{A}\cdot\mathbf{p}} - \underbrace{\frac{q\hbar}{4m^2 c^2} u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u \wedge \mathbf{E}}_{\boldsymbol{\sigma}\cdot(\mathbf{E} \wedge \mathbf{p} - \mathbf{p} \wedge \mathbf{E})}$$

On rappelle qu'il manque le courant de spin et on voit que les termes obtenus proviennent d'opérateurs différents de ceux utilisés dans la méthode variationnelle. On pourra trouver dans [90] une méthode d'obtention du courant quantique au premier ordre, à partir d'une diagonalisation du formalisme de Dirac, et qui permet d'inclure le courant de spin. L'extension de cette méthode au second ordre en  $1/m$  n'a pas été testée car elle présente des difficultés.

- En ajoutant la correction de la densité  $\rho^{(2)}$  dans la méthode de l'équation de continuité, on voit d'après l'équation (3.58) que la contribution du courant  $\mathbf{j}^{(2)}$  du deuxième ordre en  $1/m$  disparaît. On obtient alors :

$$\mathbf{j}_{continuite}(\rho^{(0)}, \rho^{(2)}) = \underbrace{\frac{i\hbar}{2m} (u\nabla u^\dagger - u^\dagger\nabla u)}_{\frac{\mathbf{p}^2}{2m}} - \underbrace{\frac{q}{m} \mathbf{A}u^\dagger u}_{\mathbf{p}\cdot\mathbf{A} + \mathbf{A}\cdot\mathbf{p}}. \quad (3.59)$$

- En ajoutant le courant de spin dans  $\mathbf{j}^{(1)}$  qui ne modifie pas l'équation de continuité, on peut résumer l'ensemble des relations de conservation de la manière suivante :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \rho^{(0)} + \nabla \cdot (\mathbf{j}^{(1)} + \mathbf{j}^{(2)}) &= 0 \\ \frac{\partial}{\partial t} \rho^{(2)} + \nabla \cdot (-\mathbf{j}^{(2)}) &= 0 \\ \frac{\partial}{\partial t} (\rho^{(0)} + \rho^{(2)}) + \nabla \cdot \mathbf{j}^{(1)} &= 0. \end{aligned} \quad (3.60)$$

Dans la section (3.4) nous développerons un modèle de champ moyen quantique non relativiste à partir des expressions des charges et des courants précédentes. Nous verrons dans la section (3.4.2) que si on ne s'intéresse exclusivement qu'aux termes d'interaction rayonnement-matière du second ordre en  $1/m$ , il suffit d'utiliser les termes  $\rho^{(0)}$ ,  $\rho^{(2)}$  et  $\mathbf{j}^{(1)}$ . Dans ces conditions, l'équation (3.60) nous assure

de la conservation de la charge.

### Démonstration du passage de l'équation (3.50) à l'équation (3.51)

On cherche à prouver l'identité :

$$-u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \wedge (\nabla u) + (\nabla u^\dagger) \wedge \boldsymbol{\sigma} u = \nabla \wedge (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u). \quad (3.61)$$

On utilise les notations suivantes pour un spineur électronique  $u$  et on rappelle l'expression des matrices de Pauli :

$$u^\dagger = (\phi_1^*, \phi_2^*), \quad u = \begin{pmatrix} \phi_1 \\ \phi_2 \end{pmatrix}, \quad \sigma_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma_y = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}.$$

Le terme de droite de (3.61) se développe selon :

$$\begin{aligned} \nabla \wedge (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u) &= \begin{pmatrix} \frac{\partial}{\partial x} \\ \frac{\partial}{\partial y} \\ \frac{\partial}{\partial z} \end{pmatrix} \wedge \begin{pmatrix} \phi_1^* \phi_2 + \phi_2^* \phi_1 \\ -i \phi_1^* \phi_2 + i \phi_2^* \phi_1 \\ \phi_1^* \phi_1 - \phi_2^* \phi_2 \end{pmatrix} \\ &= \begin{pmatrix} \frac{\partial}{\partial y} (\phi_1^* \phi_1 - \phi_2^* \phi_2) - \frac{\partial}{\partial z} (-i \phi_1^* \phi_2 + i \phi_2^* \phi_1) \\ \frac{\partial}{\partial z} (\phi_1^* \phi_2 + \phi_2^* \phi_1) - \frac{\partial}{\partial x} (\phi_1^* \phi_1 - \phi_2^* \phi_2) \\ \frac{\partial}{\partial x} (-i \phi_1^* \phi_2 + i \phi_2^* \phi_1) - \frac{\partial}{\partial y} (\phi_1^* \phi_2 + \phi_2^* \phi_1) \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (3.62)$$

On exprime également le terme de gauche de (3.61) noté  $A$  :

$$\begin{aligned} A &= -u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \wedge (\nabla u) + (\nabla u^\dagger) \wedge \boldsymbol{\sigma} u \\ &= -(\phi_1^*, \phi_2^*) \begin{pmatrix} \sigma_y \frac{\partial}{\partial z} \begin{pmatrix} \phi_1 \\ \phi_2 \end{pmatrix} - \sigma_z \frac{\partial}{\partial y} \begin{pmatrix} \phi_1 \\ \phi_2 \end{pmatrix} \\ \sigma_z \frac{\partial}{\partial x} \begin{pmatrix} \phi_1 \\ \phi_2 \end{pmatrix} - \sigma_x \frac{\partial}{\partial z} \begin{pmatrix} \phi_1 \\ \phi_2 \end{pmatrix} \\ \sigma_x \frac{\partial}{\partial y} \begin{pmatrix} \phi_1 \\ \phi_2 \end{pmatrix} - \sigma_y \frac{\partial}{\partial x} \begin{pmatrix} \phi_1 \\ \phi_2 \end{pmatrix} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} (\frac{\partial}{\partial y} \phi_1^*, \frac{\partial}{\partial y} \phi_2^*) \sigma_z \begin{pmatrix} \phi_1 \\ \phi_2 \end{pmatrix} - (\frac{\partial}{\partial z} \phi_1^*, \frac{\partial}{\partial z} \phi_2^*) \sigma_y \begin{pmatrix} \phi_1 \\ \phi_2 \end{pmatrix} \\ (\frac{\partial}{\partial z} \phi_1^*, \frac{\partial}{\partial z} \phi_2^*) \sigma_x \begin{pmatrix} \phi_1 \\ \phi_2 \end{pmatrix} - (\frac{\partial}{\partial x} \phi_1^*, \frac{\partial}{\partial x} \phi_2^*) \sigma_z \begin{pmatrix} \phi_1 \\ \phi_2 \end{pmatrix} \\ (\frac{\partial}{\partial x} \phi_1^*, \frac{\partial}{\partial x} \phi_2^*) \sigma_y \begin{pmatrix} \phi_1 \\ \phi_2 \end{pmatrix} - (\frac{\partial}{\partial y} \phi_1^*, \frac{\partial}{\partial y} \phi_2^*) \sigma_x \begin{pmatrix} \phi_1 \\ \phi_2 \end{pmatrix} \end{pmatrix} \\ &= -(\phi_1^*, \phi_2^*) \begin{pmatrix} \begin{pmatrix} -i \frac{\partial}{\partial z} \phi_2 \\ i \frac{\partial}{\partial z} \phi_1 \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} \frac{\partial}{\partial y} \phi_1 \\ -\frac{\partial}{\partial y} \phi_2 \end{pmatrix} \\ \begin{pmatrix} \frac{\partial}{\partial x} \phi_1 \\ -\frac{\partial}{\partial x} \phi_2 \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} \frac{\partial}{\partial z} \phi_2 \\ \frac{\partial}{\partial z} \phi_1 \end{pmatrix} \\ \begin{pmatrix} \frac{\partial}{\partial y} \phi_2 \\ \frac{\partial}{\partial y} \phi_1 \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} -i \frac{\partial}{\partial x} \phi_2 \\ i \frac{\partial}{\partial x} \phi_1 \end{pmatrix} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} (\frac{\partial}{\partial y} \phi_1^*, \frac{\partial}{\partial y} \phi_2^*) \begin{pmatrix} \phi_1 \\ -\phi_2 \end{pmatrix} - (\frac{\partial}{\partial z} \phi_1^*, \frac{\partial}{\partial z} \phi_2^*) \begin{pmatrix} -i \phi_2 \\ i \phi_1 \end{pmatrix} \\ (\frac{\partial}{\partial z} \phi_1^*, \frac{\partial}{\partial z} \phi_2^*) \begin{pmatrix} \phi_2 \\ \phi_1 \end{pmatrix} - (\frac{\partial}{\partial x} \phi_1^*, \frac{\partial}{\partial x} \phi_2^*) \begin{pmatrix} \phi_1 \\ -\phi_2 \end{pmatrix} \\ (\frac{\partial}{\partial x} \phi_1^*, \frac{\partial}{\partial x} \phi_2^*) \begin{pmatrix} -i \phi_2 \\ i \phi_1 \end{pmatrix} - (\frac{\partial}{\partial y} \phi_1^*, \frac{\partial}{\partial y} \phi_2^*) \begin{pmatrix} \phi_2 \\ \phi_1 \end{pmatrix} \end{pmatrix} \\ &= - \begin{pmatrix} (-\phi_1^* i \frac{\partial}{\partial z} \phi_2 + \phi_2^* i \frac{\partial}{\partial z} \phi_1) - (\phi_1^* \frac{\partial}{\partial y} \phi_1 - \phi_2^* \frac{\partial}{\partial y} \phi_2) \\ (\phi_1^* \frac{\partial}{\partial x} \phi_1 - \phi_2^* \frac{\partial}{\partial x} \phi_2) - (\phi_1^* \frac{\partial}{\partial z} \phi_2 + \phi_2^* \frac{\partial}{\partial z} \phi_1) \\ (\phi_1^* \frac{\partial}{\partial y} \phi_2 + \phi_2^* \frac{\partial}{\partial y} \phi_1) - (-\phi_1^* i \frac{\partial}{\partial x} \phi_2 + i \phi_2^* \frac{\partial}{\partial x} \phi_1) \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} (\phi_1 \frac{\partial}{\partial y} \phi_1^* - \phi_2 \frac{\partial}{\partial y} \phi_2^*) - (-i \phi_2 \frac{\partial}{\partial z} \phi_1^* + i \phi_1 \frac{\partial}{\partial z} \phi_2^*) \\ (\phi_2 \frac{\partial}{\partial z} \phi_1^* + \phi_1 \frac{\partial}{\partial z} \phi_2^*) - (\phi_1 \frac{\partial}{\partial x} \phi_1^* - \phi_2 \frac{\partial}{\partial x} \phi_2^*) \\ (-i \phi_2 \frac{\partial}{\partial x} \phi_1^* + i \phi_1 \frac{\partial}{\partial x} \phi_2^*) - (\phi_1 \frac{\partial}{\partial y} \phi_2 + \phi_2 \frac{\partial}{\partial y} \phi_1) \end{pmatrix} \\ &= \begin{pmatrix} -(-\phi_1^* i \frac{\partial}{\partial z} \phi_2 + \phi_2^* i \frac{\partial}{\partial z} \phi_1) + (\phi_1^* \frac{\partial}{\partial y} \phi_1 - \phi_2^* \frac{\partial}{\partial y} \phi_2) + (\phi_1 \frac{\partial}{\partial y} \phi_1^* - \phi_2 \frac{\partial}{\partial y} \phi_2^*) - (-i \phi_2 \frac{\partial}{\partial z} \phi_1^* + i \phi_1 \frac{\partial}{\partial z} \phi_2^*) \\ -(\phi_1^* \frac{\partial}{\partial x} \phi_1 - \phi_2^* \frac{\partial}{\partial x} \phi_2) + (\phi_1^* \frac{\partial}{\partial z} \phi_2 + \phi_2^* \frac{\partial}{\partial z} \phi_1) + (\phi_2 \frac{\partial}{\partial z} \phi_1^* + \phi_1 \frac{\partial}{\partial z} \phi_2^*) - (\phi_1 \frac{\partial}{\partial x} \phi_1^* - \phi_2 \frac{\partial}{\partial x} \phi_2^*) \\ -(\phi_1^* \frac{\partial}{\partial y} \phi_2 + \phi_2^* \frac{\partial}{\partial y} \phi_1) + (-\phi_1^* i \frac{\partial}{\partial x} \phi_2 + i \phi_2^* \frac{\partial}{\partial x} \phi_1) + (-i \phi_2 \frac{\partial}{\partial x} \phi_1^* + i \phi_1 \frac{\partial}{\partial x} \phi_2^*) - (\phi_1 \frac{\partial}{\partial y} \phi_2 + \phi_2 \frac{\partial}{\partial y} \phi_1) \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (3.63)$$

En développant (3.62) on retrouve bien (3.63) ce qui permet de prouver (3.61).

### 3.2.3 Effets d'une transformation unitaire sur l'expression des sources quantiques

Lorsqu'on travaille avec un hamiltonien du premier ordre en  $1/m$ , il n'y a aucun problème pour définir une densité de charge et une densité de courant. En effet, partant de l'équation de Schrödinger suivante :

$$\left( \frac{(\mathbf{p} - q\mathbf{A})^2}{2m} + q\Phi - \frac{q\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}) \right) u = i\hbar \frac{\partial u}{\partial t},$$

la densité de probabilité de présence  $\rho$  et la densité du courant de probabilité  $\mathbf{j}$  s'écrivent sans aucune ambiguïtés :

$$\rho = \rho^0 = u^\dagger u \quad (3.64)$$

$$\mathbf{j} = \mathbf{j}^{(1)} = \frac{i\hbar}{2m} (u \nabla u^\dagger - u^\dagger \nabla u) - \frac{q}{m} \mathbf{A} u^\dagger u + \frac{\hbar}{2m} \nabla \wedge (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u), \quad (3.65)$$

et respectent l'équation de continuité. En revanche, à partir du second ordre en  $1/m$ , si on considère le hamiltonien transformé de Foldy-Wouthuysen :

$$H = \frac{(\mathbf{p} - q\mathbf{A})^2}{2m} + q\Phi - \frac{q\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B} - \frac{q\hbar^2}{8m^2 c^2} \nabla \cdot \mathbf{E} - \frac{q\hbar}{8m^2 c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - q\mathbf{A}) - (\mathbf{p} - q\mathbf{A}) \wedge \mathbf{E}),$$

nous avons vu dans la section (3.2.2) qu'il était possible de définir une densité  $\rho^{(2)}$  et un courant  $\mathbf{j}^{(2)}$  au second ordre en  $1/m$  mais que les relations de conservation de la charge qui y sont associées ne sont pas nécessairement intuitives ou logiques.

#### Remarques préliminaires

Il est important de préciser qu'il existe d'autres méthodes qui permettent d'obtenir de telles fonctions mais qui ne donnent pas exactement les mêmes résultats.

- Dans ce travail nous avons trouvé à l'aide de la méthode variationnelle :

$$\begin{aligned} \rho^{(2)} &= u^\dagger u \frac{\hbar^2}{8m^2 c^2} \Delta - \frac{\hbar}{4m^2 c^2} u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{p} - q\mathbf{A}) u \wedge \nabla \\ \mathbf{j}^{(2)} &= -\frac{q\hbar}{4m^2 c^2} (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u \wedge \mathbf{E}). \end{aligned}$$

- Lors d'un stage de Master 2 à l'IPCMS, **Anant Dixit** a montré, à l'aide d'une approche lagrangienne que les densités de charge et de courant au deuxième ordre en  $1/m$  s'écrivaient [78] :

$$\begin{aligned} \rho^{(2)} &= \frac{\hbar^2}{8m^2 c^2} \Delta (u^\dagger u) + \frac{q\hbar}{4m^2 c^2} \nabla \cdot (\mathbf{A} \wedge (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u)) \\ \mathbf{j}^{(2)} &= \frac{\hbar}{4m^2 c^2} (\nabla \Phi \wedge (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u)) - \frac{\hbar^2}{8m^2 c^2} \frac{\partial}{\partial t} (\nabla (u^\dagger u)). \end{aligned}$$

- Dans l'ouvrage [19] de L. Landau est développé, en tant qu'intermédiaire de calcul, une expression de la densité au second ordre en  $1/m$  afin de déterminer le hamiltonien électronique du second ordre en  $1/m$ . On présente uniquement les éléments concernant l'expression de la densité. En partant de l'expression de la densité de probabilité de présence pour un bispineur  $\Psi$  et en utilisant la proportionnalité entre les composantes positronique et électronique  $v = \frac{\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p}}{2mc} u$  au premier ordre en  $1/m$ , on peut écrire :

$$\rho = |\Psi^\dagger \Psi| = \begin{pmatrix} u^\dagger \\ v^\dagger \end{pmatrix} \begin{pmatrix} u \\ v \end{pmatrix} = |u|^2 + |v|^2 = |u|^2 + \frac{\hbar^2}{4m^2 c^2} |\boldsymbol{\sigma} \cdot \nabla u|^2.$$

Les auteurs de [19] suggèrent ensuite de réaliser une opération de **renormalisation** de la fonction d'onde pour travailler avec le hamiltonien électronique :

$$\int d\mathbf{x} u'^{\dagger} u' = \int d\mathbf{x} \left( u^{\dagger} u + \frac{\hbar^2}{4m^2 c^2} (\nabla u^{\dagger} \cdot \boldsymbol{\sigma}) (\boldsymbol{\sigma} \cdot \nabla u) \right) \Rightarrow u' = \left( 1 + \frac{\mathbf{p}^2}{8m^2 c^2} \right) u.$$

On remarquera, que sous cette forme, la correction au deuxième ordre en  $1/m$  de la densité est liée à la composante positronique.

On voit bien, à travers ces trois points, que la notion de densité n'est plus tout à fait claire dès lors que l'on travaille au deuxième ordre en  $1/m$ . La piste à privilégier est peut-être dans la définition de la fonction d'onde en elle même.

### Deux points très importants

En premier lieu, il faut rappeler que le hamiltonien transformé de FW au deuxième ordre en  $1/m$  provient d'une transformation canonique du hamiltonien de Dirac  $H$ , conséquence d'une transformation unitaire d'un bispineur de Dirac  $\Psi$ .

$$\begin{cases} H\Psi = i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t} \\ \Psi' = e^{iS} \Psi \end{cases} \Rightarrow \begin{cases} H'\Psi' = i\hbar \frac{\partial \Psi'}{\partial t} \\ H' = H^{FW} = e^{iS} \left( H - \frac{\partial}{\partial t} \right) e^{-iS} \end{cases} . \quad (3.66)$$

Il est vrai que l'on peut diagonaliser le hamiltonien  $H' = H^{FW}$  pour séparer les composantes de l'électron et du positron, mais la fonction d'onde que l'on utilise n'est pas rigoureusement celle du spineur électronique. Au second ordre en  $1/m$ , l'équation de Schrödinger que l'on utilise est en réalité la suivante :

$$\left( H^{FW(2)} + \vartheta (m^{-3}) \right) (u e^{iS}) = i\hbar \frac{\partial}{\partial t} (u e^{iS}) .$$

On utilise en réalité une fonction  $u' = u e^{iS}$ . La transformation unitaire avec l'opérateur auto-adjoint  $S = S^{\dagger}$  est utilisée afin de ne pas modifier le module de la fonction d'onde. En effet si  $\Psi' = e^{iS} \Psi$  alors la transformation inverse donne  $\Psi = e^{-iS} \Psi'$  et le module s'écrit :

$$|\Psi'^{\dagger} \Psi'| = |(e^{iS} \Psi)^{\dagger} (e^{iS} \Psi)| = |(\Psi^{\dagger} e^{-iS^{\dagger}}) (e^{iS} \Psi)| = |\Psi^{\dagger} \Psi| .$$

Cette propriété vaut aussi pour  $|u'^{\dagger} u'| = |u^{\dagger} u|$ . Cependant cette condition n'est pas valable car l'opérateur hamiltonien  $H'$  est tronqué au deuxième ordre en  $1/m$  et nous n'avons pas le droit d'utiliser le développement exact de l'opérateur  $e^{iS}$ ; ce dernier doit aussi être tronqué au deuxième ordre en  $1/m$ . Ainsi, il faut garder à l'esprit que le spineur électronique  $u$  que nous utilisons depuis le début n'est pas rigoureusement celui de l'électron.

Le second point provient du fait que l'équation de conservation de la charge est modifiée lorsqu'on réalise une transformation unitaire de la fonction d'onde. **Omar Morandi** (Université de Strasbourg) a montré (dans un travail non publié) que les sources de densité de charge et de densité de courant devaient contenir chacun un terme supplémentaire provenant d'une telle transformation. On présente les résultats de ce travail sans rentrer dans les détails ni dans les démonstrations. Considérons un hamiltonien  $H(\Phi, \mathbf{A})$  et une fonction  $\Psi$  ne dépendant ni de  $\Phi$ , ni de  $\mathbf{A}$ , tels que :

$$H(\Phi, \mathbf{A})\Psi = i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t} .$$

On suppose qu'à partir de l'équation précédente et de la définition  $\rho = \Psi^{\dagger} \Psi$ , on peut établir une équation de continuité :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{j} = 0,$$

où  $\mathbf{j} = \mathbf{j}(\Psi)$ . Ceci est par exemple, le cas de l'équation de Dirac. On suppose également, qu'à partir de la définition de l'énergie moyenne  $\langle \Psi | H(\Phi, \mathbf{A}) | \Psi \rangle$ , on puisse appliquer un principe variationnel qui définisse :

$$\begin{aligned} \frac{\delta}{\delta \Phi} (\langle \Psi | H(\Phi, \mathbf{A}) | \Psi \rangle) &= \rho \\ \frac{\delta}{\delta \mathbf{A}} (\langle \Psi | H(\Phi, \mathbf{A}) | \Psi \rangle) &= \mathbf{j}, \end{aligned} \quad (3.67)$$

et qui permette d'écrire l'équation de conservation de la charge selon :

$$\frac{\partial}{\partial t} \left( \frac{\delta}{\delta \Phi} (\langle \Psi | H(\Phi, \mathbf{A}) | \Psi \rangle) \right) + \nabla \cdot \left( \frac{\delta}{\delta \mathbf{A}} (\langle \Psi | H(\Phi, \mathbf{A}) | \Psi \rangle) \right) = 0. \quad (3.68)$$

Si on réalise à présent, comme dans la transformation de Foldy-Wouthuysen, une transformation unitaire du type  $\Psi' = e^{iS}\Psi$ , qui conduit au hamiltonien suivant (pour simplifier on néglige ici la dépendance temporelle) :

$$H'(\Phi, \mathbf{A}) = e^{iS} H(\Phi, \mathbf{A}) e^{-iS},$$

l'équation (3.68) devient :

$$\frac{\partial}{\partial t} \left( \frac{\delta}{\delta \Phi} (\langle \Psi | e^{-iS} H(\Phi, \mathbf{A}) e^{iS} | \Psi \rangle) \right) + \nabla \cdot \left( \frac{\delta}{\delta \mathbf{A}} (\langle \Psi | e^{-iS} H(\Phi, \mathbf{A}) e^{iS} | \Psi \rangle) \right) = 0. \quad (3.69)$$

On peut développer le terme de (3.69) présent dans la dérivée temporelle selon :

$$\begin{aligned} \frac{\delta}{\delta \Phi} (\langle \Psi | e^{-iS} H(\Phi, \mathbf{A}) e^{iS} | \Psi \rangle) &= \left\langle \Psi e^{-iS} \left| \frac{\delta H'}{\delta \Phi} \right| e^{iS} \Psi \right\rangle + \left\langle \Psi e^{-iS} \left[ \left[ e^{iS} \frac{\delta e^{-iS}}{\delta \Phi}, H' \right] \right] e^{iS} \Psi \right\rangle \\ &= \left\langle \Psi' \left| \frac{\delta H'}{\delta \Phi} \right| \Psi' \right\rangle + \left\langle \Psi' \left[ \left[ e^{iS} \frac{\delta e^{-iS}}{\delta \Phi}, H' \right] \right] \Psi' \right\rangle. \end{aligned}$$

Cette opération vaut aussi pour le terme sur lequel s'applique l'opérateur divergence. Ainsi, après une transformation unitaire de la fonction d'onde, dans la nouvelle représentation, l'équation de conservation (3.69) prend la forme suivante :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \left( \left\langle \Psi' \left| \frac{\delta H'}{\delta \Phi} \right| \Psi' \right\rangle + \left\langle \Psi' \left[ \left[ e^{iS} \frac{\delta e^{-iS}}{\delta \Phi}, H' \right] \right] \Psi' \right\rangle \right) + \\ \nabla \cdot \left( \left\langle \Psi' \left| \frac{\delta H'}{\delta \mathbf{A}} \right| \Psi' \right\rangle + \left\langle \Psi' \left[ \left[ e^{iS} \frac{\delta e^{-iS}}{\delta \mathbf{A}}, H' \right] \right] \Psi' \right\rangle \right) = 0, \end{aligned} \quad (3.70)$$

ce qui amène à définir la densité de charge et la densité de courant selon :

$$\rho = \left\langle \Psi' \left| \frac{\delta H'}{\delta \Phi} \right| \Psi' \right\rangle + \left\langle \Psi' \left[ \left[ e^{iS} \frac{\delta e^{-iS}}{\delta \Phi}, H' \right] \right] \Psi' \right\rangle \quad (3.71)$$

$$\mathbf{j} = \left\langle \Psi' \left| \frac{\delta H'}{\delta \mathbf{A}} \right| \Psi' \right\rangle + \left\langle \Psi' \left[ \left[ e^{iS} \frac{\delta e^{-iS}}{\delta \mathbf{A}}, H' \right] \right] \Psi' \right\rangle \quad (3.72)$$

On voit d'après les formules (3.71) et (3.72) que les expressions de  $\rho$  et de  $\mathbf{j}$  dérivées dans la section (3.2.1) ne correspondent qu'au premier terme de chaque équations. Nos expressions ne prennent pas en compte les termes provenant de la transformation unitaire.

## Conclusions et remarques

- Suite aux différents cas de figure rencontrés, nous ne sommes pas en mesure de donner une expression exacte et définitive de la densité de charge  $\rho^{(2)}$  et de courant  $\mathbf{j}^{(2)}$  au deuxième ordre en  $1/m$ . **C'est un problème encore ouvert.**
- L'interprétation physique de ce phénomène reste aussi à comprendre, et le rôle du positron à clarifier.
- Nous choisissons cependant de continuer le travail avec les expressions que nous avons trouvées car elle fournissent des résultats intéressants comme nous le verrons plus tard (section (3.4)). A ce sujet, dans le cadre non-relativiste, nous travaillerons avec la fonction d'onde électronique suivante :

$$u \equiv ue^{iS},$$

tout en gardant à l'esprit qu'elle ne représente pas exactement le spineur électronique et contient d'autres informations.

### 3.3 Théorie de champ moyen dans le formalisme de Dirac

« La circulation était plus facile,  
au temps du pont Churchill. »

Allez les bleus et blancs !

Cette section concerne la dynamique quantique relativiste dans le formalisme de Dirac. La section (3.3.1) présente les équations de champ moyen pour un système de  $N$  bispineurs de Dirac, auto-cohérentes avec les équations de Maxwell dans la jauge de Coulomb et dans l'approximation quasistatique. La densité de probabilité de présence et la densité de courant de probabilité sont exprimées dans le cadre quantique relativiste. On isole dans la section (3.3.2) les termes d'interaction rayonnement-matière donnés par un tel modèle. Il s'agit de les comparer aux termes de champ moyen obtenus par une approche variationnelle selon la méthode de dérivation des équations de Hartree à partir du hamiltonien d'interaction de Breit (section(3.3.3)). On montre dans la section (3.3.4) que les deux approches sont équivalentes.

#### 3.3.1 Equations auto-cohérentes

Soit un système de  $N$  électrons en interaction de charges  $q_1 = q_2 = \dots = q_N = q$ . On suppose que  $\Phi_{int}(\mathbf{x}, t)$  et  $\mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t)$  sont les potentiels **internes moyens** créés par l'ensemble des  $N$  particules. Un électron quelconque décrit par un bispineur  $\Psi(\mathbf{x}, t) = (u(\mathbf{x}, t), v(\mathbf{x}, t))$  obéit à l'équation de Dirac, couplée de façon auto-cohérente avec les équations de Maxwell selon :

$$\begin{aligned}
 * \quad & (c\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} - q\mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t)) + mc^2\beta + q\Phi_{int}(\mathbf{x}, t)) \Psi(\mathbf{x}, t) = i\hbar \frac{\partial \Psi(\mathbf{x}, t)}{\partial t} \\
 * \quad & \Delta \Phi_{int}(\mathbf{x}, t) = -\frac{\rho(\mathbf{x}, t)}{\epsilon_0} \\
 * \quad & \Delta \mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t) = -\mu_0 \mathbf{j}_T(\mathbf{x}, t).
 \end{aligned} \tag{3.73}$$

Les sources s'écrivent à l'aide de la densité de probabilité de présence et de la densité de courant de probabilité respectant l'équation de conservation  $\left(\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{j} = 0\right)$  qui découle du formalisme de

Dirac :

$$\begin{aligned}\rho(\mathbf{x}, t) &= q \sum_{i=1}^N \Psi_i^\dagger(\mathbf{x}, t) \Psi_i(\mathbf{x}, t) \\ \mathbf{j}(\mathbf{x}, t) &= q \sum_{i=1}^N c \Psi_i^\dagger(\mathbf{x}, t) \boldsymbol{\alpha} \Psi_i(\mathbf{x}, t).\end{aligned}$$

Les potentiels s'expriment conformément aux équations (3.18) et (3.19) avec  $r \equiv |\mathbf{x} - \mathbf{x}'|$  :

$$\Phi_{int}(\mathbf{x}, t) = \frac{q}{4\pi\epsilon_0} \int \frac{d\mathbf{x}'}{r} \left( \sum_{i=1}^N \Psi_i^\dagger(\mathbf{x}', t) \Psi_i(\mathbf{x}', t) \right) \quad (3.74)$$

$$\mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t) = \frac{q}{2(4\pi\epsilon_0)c} \int d\mathbf{x}' \sum_{i=1}^N \left( \frac{\Psi_i^\dagger(\mathbf{x}', t) \boldsymbol{\alpha} \Psi_i(\mathbf{x}', t)}{r} + \frac{\mathbf{r}(\mathbf{r} \cdot \Psi_i^\dagger(\mathbf{x}', t) \boldsymbol{\alpha} \Psi_i(\mathbf{x}', t))}{r^3} \right). \quad (3.75)$$

### 3.3.2 Hamiltonien d'interaction rayonnement-matière

A partir de l'équation (3.73) on peut isoler le hamiltonien d'interaction entre la particule et les champs électromagnétiques internes :

$$H_{inter}(\mathbf{x}, t) = q\Phi_{int}(\mathbf{x}, t) - qc\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t). \quad (3.76)$$

On réinjecte ensuite les potentiels (3.74) et (3.75) dans (3.76). Par soucis de simplification on note :

$$\sum_{i=1}^N \Psi_i^\dagger(\mathbf{x}, t) \Psi_i(\mathbf{x}, t) \equiv \Psi^\dagger \Psi$$

et le terme d'interaction devient :

$$H_{inter} = \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0} \left( \int \frac{d\mathbf{x}' \Psi^\dagger \Psi}{r} - \boldsymbol{\alpha} \cdot \int d\mathbf{x}' \left( \frac{\Psi^\dagger \boldsymbol{\alpha} \Psi}{2r} + \frac{\mathbf{r}(\mathbf{r} \cdot \Psi^\dagger \boldsymbol{\alpha} \Psi)}{2r^3} \right) \right). \quad (3.77)$$

### 3.3.3 Equations de Hartree-Breit

On considère un système de  $N$  électrons en interaction où la fonction d'onde totale du système est décrite dans l'approximation de Hartree comme produit des  $N$  bispineurs :  $\Psi = \Psi(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_N) = \Psi_1(\mathbf{r}_1) \Psi_2(\mathbf{r}_2) \dots \Psi_N(\mathbf{r}_N)$ . Le système évolue selon une équation de type Schrödinger (3.78) et le hamiltonien exact  $H$  est donné par (3.79)

$$H\Psi = E\Psi \quad (3.78)$$

$$H = \sum_{i=1}^N c\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \mathbf{p}_i + mc^2 \beta_i + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j}^N U_{ij}, \quad (3.79)$$

avec  $U_{ij}$  l'opérateur d'énergie potentielle entre deux particules  $i$  et  $j$ , qui se compose de deux parties. La première,  $K_{ij}$ , est l'interaction coulombienne et la seconde  $B_{ij}$  est le hamiltonien d'interaction de Breit. On note ici  $e^2 \equiv \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0}$  :

$$\begin{aligned}U_{ij} &= K_{ij} + B_{ij} \\ K_{ij} &= \frac{e^2}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} = \frac{e^2}{r_{ij}} \\ B_{ij} &= -e^2 \left( \frac{\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \boldsymbol{\alpha}_j}{2r_{ij}} + \frac{(\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})(\boldsymbol{\alpha}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{2r_{ij}^3} \right).\end{aligned}$$

On cherche à déterminer l'énergie moyenne du système :

$$E = \frac{\langle \Psi | H | \Psi \rangle}{\langle \Psi | \Psi \rangle} = \langle \Psi | H | \Psi \rangle .$$

On multiplie le hamiltonien  $H$  à gauche par le bra  $\langle \Psi |$  et à droite par le ket  $|\Psi\rangle$  puis on intègre sur les  $N$   $d\mathbf{r}_i$ . La partie contenant l'énergie cinétique et l'énergie de masse est composée d'opérateurs à un corps ne dépendant que de  $i$  ( $\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \mathbf{p}_i$  et  $\beta_i$ ), les  $N - 1$  fonctions  $\Psi_{j,j \neq i}$  disparaissent à l'aide de la condition de normalisation  $\langle \Psi_j | \Psi_j \rangle = 1$ . La partie d'interaction contient des opérateurs à deux corps avec des double indices  $i$  et  $j$ , la normalisation n'opère que pour  $N - 2$  fonctions  $\Psi_{k,k \neq i \neq j}$ . Ainsi, la valeur moyenne du hamiltonien s'écrit :

$$\begin{aligned} \langle H \rangle &= \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i \Psi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) (c\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \mathbf{p}_i + mc^2\beta_i) \Psi_i(\mathbf{r}_i) + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j \Psi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{e^2}{r_{ij}} \Psi_i(\mathbf{r}_i) \Psi_j(\mathbf{r}_j) \\ &\quad - \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j \Psi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) e^2 \left( \frac{\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \boldsymbol{\alpha}_j}{2r_{ij}} + \frac{(\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})(\boldsymbol{\alpha}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{2r_{ij}^3} \right) \Psi_i(\mathbf{r}_i) \Psi_j(\mathbf{r}_j). \end{aligned}$$

On fabrique ensuite une fonctionnelle  $F(\Psi_i^\dagger, \Psi_i)$  à l'aide de la méthode des multiplicateurs de Lagrange.

$$\begin{aligned} F &= \langle H \rangle - \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i \Psi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \epsilon_i \Psi_i(\mathbf{r}_i) \\ &= \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i \Psi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) (c\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \mathbf{p}_i + mc^2\beta_i - \epsilon_i) \Psi_i(\mathbf{r}_i) + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j \Psi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{e^2}{r_{ij}} \Psi_i(\mathbf{r}_i) \Psi_j(\mathbf{r}_j) \\ &\quad - \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j \Psi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \left( \frac{\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \boldsymbol{\alpha}_j}{2r_{ij}} + \frac{(\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})(\boldsymbol{\alpha}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{2r_{ij}^3} \right) \Psi_i(\mathbf{r}_i) \Psi_j(\mathbf{r}_j), \end{aligned}$$

afin d'en opérer la minimisation par rapport aux variables indépendantes  $\Psi_i$  et  $\Psi_i^\dagger$ , c'est-à-dire obtenir une équation du type :

$$\delta F(\Psi_i^\dagger, \Psi_i) = \sum_{i=1}^N \delta \Psi_i^\dagger [\hat{h} \Psi_i] + \delta(\Psi_i^\dagger)^* [\hat{h}^* \Psi_i^*] = 0. \quad (3.80)$$

Pour cela on remarque que la partie cinétique et d'énergie de masse est un produit de fonctions de  $\Psi_i^*$  et  $\Psi_i$  dont la dérivation donnera deux termes. En revanche, la partie d'interaction est un produit des quatre fonctions  $\Psi_i^\dagger$ ,  $\Psi_i$ ,  $\Psi_j^\dagger$  et  $\Psi_j$  et doit donc donner quatre termes. Cependant, on peut utiliser leurs propriétés de symétrie à savoir :

$$\begin{aligned} &\frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j (\delta \Psi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) + \Psi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \delta \Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j)) U_{ij} \Psi_i(\mathbf{r}_i) \Psi_j(\mathbf{r}_j) \\ &= \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j \delta \Psi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) U_{ij} \Psi_i(\mathbf{r}_i) \Psi_j(\mathbf{r}_j), \end{aligned}$$

pour n'obtenir finalement que deux termes au lieu de quatre. On écrit alors directement pour la minimisation de la fonctionnelle :

$$\begin{aligned}
\delta F &= \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i \delta\Psi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) (c\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \mathbf{p}_i + mc^2\beta_i - \epsilon_i) \Psi_i(\mathbf{r}_i) + \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j \delta\Psi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{e^2}{r_{ij}} \Psi_i(\mathbf{r}_i) \Psi_j(\mathbf{r}_j) \\
&\quad - e^2 \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j \delta\Psi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \left( \frac{\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \boldsymbol{\alpha}_j}{2r_{ij}} + \frac{(\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})(\boldsymbol{\alpha}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{2r_{ij}^3} \right) \Psi_i(\mathbf{r}_i) \Psi_j(\mathbf{r}_j) \\
&\quad + \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i \Psi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) (c\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \mathbf{p}_i + mc^2\beta_i - \epsilon_i) \delta\Psi_i(\mathbf{r}_i) + \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j \Psi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{e^2}{r_{ij}} \delta\Psi_i(\mathbf{r}_i) \Psi_j(\mathbf{r}_j) \\
&\quad - e^2 \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j \Psi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \left( \frac{\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \boldsymbol{\alpha}_j}{2r_{ij}} + \frac{(\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})(\boldsymbol{\alpha}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{2r_{ij}^3} \right) \delta\Psi_i(\mathbf{r}_i) \Psi_j(\mathbf{r}_j). \tag{3.81}
\end{aligned}$$

Les trois premiers termes de (3.81) permettent directement une factorisation par rapport à  $\delta\Psi_i^\dagger$ ,

$$\begin{aligned}
\delta F(\Psi_i^\dagger, \Psi_i) &= \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i \delta\Psi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \left( c\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \mathbf{p}_i + mc^2\beta_i - \epsilon_i + \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \frac{e^2 \Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \Psi_j(\mathbf{r}_j)}{r_{ij}} \right. \\
&\quad \left. - \boldsymbol{\alpha}_i e^2 \cdot \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \left( \frac{\Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \boldsymbol{\alpha}_j \Psi_j(\mathbf{r}_j)}{2r_{ij}} + \frac{\mathbf{r}_{ij} (\Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \boldsymbol{\alpha}_j \Psi_j(\mathbf{r}_j) \cdot \mathbf{r}_{ij})}{2r_{ij}^3} \right) \right) \Psi_i(\mathbf{r}_i) \\
&\quad + \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i \left( \Psi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) c\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \mathbf{p}_i \delta\Psi_i(\mathbf{r}_i) + \delta\Psi_i(\mathbf{r}_i) \left( mc^2\beta_i - \epsilon_i + \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \frac{e^2 \Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \Psi_j(\mathbf{r}_j)}{r_{ij}} \right) \right) \Psi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \\
&\quad - \Psi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \boldsymbol{\alpha}_i \delta\Psi_i(\mathbf{r}_i) e^2 \cdot \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \left( \frac{\Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \boldsymbol{\alpha}_j \Psi_j(\mathbf{r}_j)}{2r_{ij}} + \frac{\mathbf{r}_{ij} (\Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \boldsymbol{\alpha}_j \Psi_j(\mathbf{r}_j) \cdot \mathbf{r}_{ij})}{2r_{ij}^3} \right) \Big) = 0
\end{aligned}$$

En revanche, pour les trois derniers il faut permuter  $\Psi_i^\dagger$  et  $\delta\Psi_i$ . Celle-ci se réalise sans problème pour les termes d'énergie de masse et d'interaction coulombienne. Concernant la partie cinétique, on utilise le fait que l'opérateur  $\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{p}$  soit hermitique c'est à dire  $\langle \Psi_i | \boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{p} | \delta\Psi_i \rangle = (\langle \delta\Psi_i | \boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{p} | \Psi_i \rangle)^*$ . Le même argument est utilisé pour le terme de Breit  $\langle \Psi_i | \boldsymbol{\alpha} | \delta\Psi_i \rangle = (\langle \delta\Psi_i | \boldsymbol{\alpha} | \Psi_i \rangle)^*$ . Ceci permet de donner une forme semblable à (3.80) :

$$\begin{aligned}
\delta F(\Psi_i^\dagger, \Psi_i) &= \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i \delta\Psi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \left( c\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \mathbf{p}_i + mc^2\beta_i - \epsilon_i + \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \frac{e^2 \Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \Psi_j(\mathbf{r}_j)}{r_{ij}} \right. \\
&\quad \left. - \boldsymbol{\alpha}_i e^2 \cdot \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \left( \frac{\Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \boldsymbol{\alpha}_j \Psi_j(\mathbf{r}_j)}{2r_{ij}} + \frac{\mathbf{r}_{ij} (\Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \boldsymbol{\alpha}_j \Psi_j(\mathbf{r}_j) \cdot \mathbf{r}_{ij})}{2r_{ij}^3} \right) \right) \Psi_i(\mathbf{r}_i) \\
&\quad + \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i (\delta\Psi_i^\dagger)^*(\mathbf{r}_i) \left( c\boldsymbol{\alpha}_i^* \cdot \mathbf{p}_i^* + mc^2\beta_i - \epsilon_i + \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \frac{e^2 \Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \Psi_j(\mathbf{r}_j)}{r_{ij}} \right. \\
&\quad \left. - \boldsymbol{\alpha}_i^* e^2 \cdot \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \left( \frac{\Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \boldsymbol{\alpha}_j \Psi_j(\mathbf{r}_j)}{2r_{ij}} + \frac{\mathbf{r}_{ij} (\Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \boldsymbol{\alpha}_j \Psi_j(\mathbf{r}_j) \cdot \mathbf{r}_{ij})}{2r_{ij}^3} \right) \right) \Psi_i^*(\mathbf{r}_i) = 0.
\end{aligned}$$

On obtient alors  $N$  équations monoélectroniques pour les fonctions d'onde  $\Psi_i(\mathbf{r}_i)$  que l'on appelle **équations de Hartree-Breit** :

$$\left( c\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \mathbf{p}_i + mc^2\beta_i + \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \frac{e^2 \Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \Psi_j(\mathbf{r}_j)}{r_{ij}} - e^2 \boldsymbol{\alpha}_i \cdot \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \left( \frac{\Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \boldsymbol{\alpha}_j \Psi_j(\mathbf{r}_j)}{2r_{ij}} + \frac{\mathbf{r}_{ij} (\Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \boldsymbol{\alpha}_j \Psi_j(\mathbf{r}_j) \cdot \mathbf{r}_{ij})}{2\mathbf{r}_{ij}^3} \right) \right) \Psi_i(\mathbf{r}_i) = \epsilon_i \Psi_i(\mathbf{r}_i). \quad (3.82)$$

Un électron quelconque ressent donc l'interaction électromagnétique moyenne :

$$U = \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \frac{e^2 \Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \Psi_j(\mathbf{r}_j)}{r_{ij}} - e^2 \boldsymbol{\alpha}_i \cdot \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \left( \frac{\Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \boldsymbol{\alpha}_j \Psi_j(\mathbf{r}_j)}{2r_{ij}} + \frac{\mathbf{r}_{ij} (\Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \boldsymbol{\alpha}_j \Psi_j(\mathbf{r}_j) \cdot \mathbf{r}_{ij})}{2\mathbf{r}_{ij}^3} \right) \quad (3.83)$$

Le premier terme est l'équivalent du terme de Hartree. Le deuxième terme est un potentiel vecteur moyen produit par le terme de Gaunt et le troisième un potentiel vecteur moyen produit par le terme de Jauge.

### 3.3.4 Comparaison des deux méthodes

On cherche à voir l'équivalence des deux approches. On compare donc le terme (3.77) aux termes d'interaction dans l'équation (3.83) :

$$\begin{aligned} (3.77) &= \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0} \left( \int \frac{d\mathbf{x}' \Psi^\dagger \Psi}{r} - \boldsymbol{\alpha} \cdot \int d\mathbf{x}' \left( \frac{\Psi^\dagger \boldsymbol{\alpha} \Psi}{2r} + \frac{\mathbf{r}(\mathbf{r} \cdot \Psi^\dagger \boldsymbol{\alpha} \Psi)}{2r^3} \right) \right) \\ (3.83) &= \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \frac{e^2 \Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \Psi_j(\mathbf{r}_j)}{r_{ij}} - e^2 \boldsymbol{\alpha}_i \cdot \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \left( \frac{\Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \boldsymbol{\alpha}_j \Psi_j(\mathbf{r}_j)}{2r_{ij}} + \frac{\mathbf{r}_{ij} (\Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \boldsymbol{\alpha}_j \Psi_j(\mathbf{r}_j) \cdot \mathbf{r}_{ij})}{2\mathbf{r}_{ij}^3} \right). \end{aligned}$$

Dans la formule (3.83), le vecteur position  $\mathbf{r}_i$  de l'électron  $i$  est équivalent au vecteur position  $\mathbf{x}$  de la formule (3.77) qui est exprimé dans la variable  $r = |\mathbf{x} - \mathbf{x}'|$ . Les vecteurs position  $\mathbf{r}_j$  des autres électrons  $j$  sont équivalents aux vecteurs position  $\mathbf{x}'$ . On rappelle également que  $e^2 \equiv \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0}$  dans le formalisme de Hartree-Breit. Ainsi si on réalise la substitution suivante :

$$\sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) f(r_{ij}) \Psi_j(\mathbf{r}_j) \mapsto \int d\mathbf{x}' \Psi^\dagger f(r) \Psi,$$

la formule (3.83) se transforme et correspond bien à (3.77) :

$$(3.83) \mapsto \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0} \int \frac{d\mathbf{x}' \Psi^\dagger \Psi}{r} - \frac{q^2 \boldsymbol{\alpha}}{4\pi\epsilon_0} \cdot \int d\mathbf{x}' \left( \frac{\Psi^\dagger \boldsymbol{\alpha} \Psi}{2r} + \frac{\mathbf{r}(\mathbf{r} \cdot \Psi^\dagger \boldsymbol{\alpha} \Psi)}{2r^3} \right) = (3.77).$$

#### Remarques

- Dans la théorie auto-cohérente, la densité de charge est définie pour l'ensemble des particules alors que dans la méthode de Hartree, un électron  $i$  ressent les potentiels des particules  $j \neq i$ .
- **Les deux approches sont équivalentes à condition de négliger l'auto-interaction.**

### 3.4 Théorie de champ moyen semi-relativiste au second ordre en $1/m$

« Pils ou schnaps ? »

Jeu de hasard à issue déterministe.

Dans la section (3.4.1) on présente les équations de champ moyen qui permettent d'inclure l'ensemble des effets relativistes du second ordre en  $1/m$ , auto-cohérentes avec les équations de Maxwell dans la jauge de Coulomb et dans l'approximation quasistatique. Les sources de charge et de courant sont exprimées dans un formalisme quantique non-relativiste au second ordre en  $1/m$  à l'aide des expressions déterminées dans la section (3.2.1). Dans la section (3.4.2) on détermine le hamiltonien d'interaction rayonnement matière comportant exclusivement les termes du second ordre en  $1/m$ . Une autre théorie de champ moyen incluant les effets relativistes d'interaction rayonnement-matière du second ordre en  $1/m$  est réalisée en section (3.4.3) en dérivant le hamiltonien de Breit-Pauli selon la méthode de Hartree. On cherche à prouver l'équivalence des deux méthodes dans la section (3.4.4).

#### 3.4.1 Equations auto-cohérentes

Soit un système de  $N$  électrons en interaction de charges  $q_1 = q_2 = \dots = q_N = q$ . On considère que l'ensemble du système génère des potentiels internes moyens vecteur  $\mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t)$  et scalaire  $\Phi_{int}(\mathbf{x}, t)$ , associés aux champs internes moyens électrique  $\mathbf{E}_{int}(\mathbf{x}, t)$  et magnétique  $\mathbf{B}_{int}(\mathbf{x}, t)$ . Le hamiltonien électronique est le hamiltonien transformé de Foldy-Wouthuysen au second ordre en  $(1/m)$  qui régit l'évolution du spineur électronique  $u(\mathbf{x}, t)$ , et les potentiels internes moyens évoluent selon des équations de type "Poisson". Les équations auto-cohérentes sont les suivantes :

$$\begin{aligned}
 * \quad & \left( \frac{(\mathbf{p} - q\mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t))^2}{2m} - \frac{q\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t)) + q\Phi_{int}(\mathbf{x}, t) - \frac{q\hbar^2}{8m^2c^2} \nabla \cdot \mathbf{E}_{int}(\mathbf{x}, t) \right. \\
 & \left. - \frac{q\hbar}{8m^2c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E}_{int}(\mathbf{x}, t) \wedge (\mathbf{p} - q\mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t)) - (\mathbf{p} - q\mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t)) \wedge \mathbf{E}_{int}(\mathbf{x}, t)) \right) u(\mathbf{x}, t) = i\hbar \frac{\partial u(\mathbf{x}, t)}{\partial t} \\
 * \quad & \Delta \Phi_{int}(\mathbf{x}, t) = -\frac{\rho(\mathbf{x}, t)}{\epsilon_0} \\
 * \quad & \Delta \mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t) = -\mu_0 \mathbf{j}_T(\mathbf{x}, t).
 \end{aligned}$$

Les expressions mathématiques des potentiels scalaire  $\Phi_{int}(\mathbf{x}, t)$  et vecteur  $\mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t)$  sont :

$$\begin{aligned}
 \Phi_{int}(\mathbf{x}, t) &= \frac{q}{4\pi\epsilon_0} \int \frac{d\mathbf{x}' \rho(\mathbf{x}', t)}{r} \\
 \mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t) &= \frac{q}{2(4\pi\epsilon_0)c^2} \int d\mathbf{x}' \left( \frac{\mathbf{j}(\mathbf{x}', t)}{r} + \frac{\mathbf{r}(\mathbf{r} \cdot \mathbf{j}(\mathbf{x}', t))}{r^3} \right).
 \end{aligned}$$

Elles sont couplées de façon auto-cohérente avec l'équation de Schrödinger en écrivant les densités de charge  $\rho(\mathbf{x}, t)$  et de courant  $\mathbf{j}(\mathbf{x}, t)$  dans le cadre de la **mécanique quantique non-relativiste** au **second ordre** en  $(1/m)$  :

$$\begin{aligned}
 \rho(\mathbf{x}, t) &= q \sum_{i=1}^N \rho_i(\mathbf{x}, t) = q \sum_{i=1}^N \left( \rho_i^{(0)}(\mathbf{x}, t) + \rho_i^{(2)}(\mathbf{x}, t) \right) \\
 \mathbf{j}(\mathbf{x}, t) &= q \sum_{i=1}^N \mathbf{j}_i(\mathbf{x}, t) = q \sum_{i=1}^N \left( \mathbf{j}_i^{(1)}(\mathbf{x}, t) + \mathbf{j}_i^{(2)}(\mathbf{x}, t) \right),
 \end{aligned}$$

avec les expressions des sources déterminées dans la section (3.2.1) :

$$\rho_i^{(0)} = u_i^\dagger u_i \quad (3.84)$$

$$\rho_i^{(2)} = u_i^\dagger u_i \frac{\hbar^2}{8m^2 c^2} \Delta - \frac{\hbar}{4m^2 c^2} u_i^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot ((\mathbf{p} - q\mathbf{A})u_i \wedge \nabla) \quad (3.85)$$

$$\mathbf{j}_i^{(1)} = \frac{i\hbar}{2m} (u_i \nabla u_i^\dagger - u_i^\dagger \nabla u_i) - \frac{q}{2m} \mathbf{A} u_i^\dagger u_i + \frac{\hbar}{2m} \nabla \wedge (u_i^\dagger \boldsymbol{\sigma} u_i) \quad (3.86)$$

$$\mathbf{j}_i^{(2)} = -\frac{q\hbar}{4m^2 c^2} (u_i^\dagger \boldsymbol{\sigma} u_i \wedge \mathbf{E}). \quad (3.87)$$

### 3.4.2 Hamiltonien d'interaction rayonnement-matière

On cherche à déterminer le hamiltonien d'interaction rayonnement-matière contenant exclusivement des termes du second ordre en  $1/m$ . Du fait du développement des sources en puissance de  $(1/m)$  les potentiels vecteur et scalaire (notés  $\mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t) = \mathbf{A}_{int}$  et  $\Phi_{int}(\mathbf{x}, t) = \Phi_{int}$ ) contiennent des termes équivalents :

$$\begin{aligned} \Phi_{int} &= \Phi_{int}^{(0)} + \Phi_{int}^{(2)} \\ \mathbf{A}_{int} &= \mathbf{A}_{int}^{(1)} + \mathbf{A}_{int}^{(2)}. \end{aligned} \quad (3.88)$$

En réinjectant ces termes dans l'équation de Schrödinger du second ordre en  $1/m$ , il apparaît des termes d'ordres supérieurs. Pour étudier de façon précise les interactions physiques du second ordre en  $1/m$ , il est donc important de sélectionner les termes considérés.

#### Extraction des termes du second ordre en $1/m$

On propose d'injecter les expressions (3.88) dans le hamiltonien transformé de Foldy-Wouthuysen au deuxième ordre en  $(1/m)$  :

$$\begin{aligned} H^{(FW(2))} &= \left( \frac{(\mathbf{p} - q\mathbf{A}_{int})^2}{2m} - \frac{q\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}_{int}) - \frac{q\hbar^2}{8m^2 c^2} \nabla \cdot \mathbf{E}_{int} \right. \\ &\quad \left. + q\Phi_{int}(x, t) - \frac{q\hbar}{8m^2 c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E}_{int} \wedge (\mathbf{p} - q\mathbf{A}_{int}) - (\mathbf{p} - q\mathbf{A}_{int}) \wedge \mathbf{E}_{int}) \right), \end{aligned}$$

et de sélectionner pour chaque opérateur les termes appartenant exclusivement au second ordre en  $1/m$ . Ainsi l'**opérateur de Coulomb** se développe en trois termes compte tenu de (3.84) et (3.85) mais deux seulement sont conservés :

$$\begin{aligned} q\Phi_{int} &= \underbrace{q\Phi_{int}^{(0)}}_{\text{ordre0}} + \underbrace{q\Phi_{int}^{(2)}(\mathbf{p})}_{\text{ordre2}} + \underbrace{q\Phi_{int}^{(3+4)}(\mathbf{A})}_{\text{ordre3+4}} \\ &= q\Phi_{int}^{(0)} + q\Phi_{int}^{(2)} + \vartheta(m^{-3}). \end{aligned} \quad (3.89)$$

Le **terme de Darwin** devient :

$$\begin{aligned} -\frac{q\hbar^2}{8m^2 c^2} \nabla \cdot \mathbf{E}_{int} &= \frac{q\hbar^2}{8m^2 c^2} \Delta \Phi_{int} = \underbrace{\frac{q\hbar^2}{8m^2 c^2} \Delta \Phi_{int}^{(0)}}_{\text{ordre2}} + \underbrace{\frac{q\hbar^2}{8m^2 c^2} \Delta \Phi_{int}^{(2)}(\mathbf{p})}_{\text{ordre4}} \\ &= \frac{q\hbar^2}{8m^2 c^2} \Delta \Phi_{int}^{(0)} + \vartheta(m^{-3}). \end{aligned} \quad (3.90)$$

Dans l'opérateur énergie cinétique les éléments du couplage champs-matière sont :

$$\begin{aligned}
\frac{(\mathbf{p} - q\mathbf{A}_{int})^2}{2m} &\longmapsto -\frac{1}{2m}(q\mathbf{p} \cdot \mathbf{A}_{int} + q\mathbf{A}_{int} \cdot \mathbf{p} - q^2\mathbf{A}_{int}^2) \\
&= -\frac{q}{2m} \underbrace{(\mathbf{p} \cdot \mathbf{A}_{int}^{(1)} + \mathbf{A}_{int}^{(1)} \cdot \mathbf{p})}_{\text{ordre2}} - \frac{q}{2m} \underbrace{(\mathbf{p} \cdot \mathbf{A}_{int}^{(2)} + \mathbf{A}_{int}^{(2)} \cdot \mathbf{p})}_{\text{ordre3}} + \frac{q^2}{2m} \mathbf{A}_{int}^2 \\
&= -\frac{q}{m} \mathbf{A}_{int}^{(1)} \cdot \mathbf{p} + \vartheta(m^{-3}). \tag{3.91}
\end{aligned}$$

La forme (3.91) est obtenue car on rappelle qu'en jauge de Coulomb ( $\nabla \cdot \mathbf{A} = 0$ ) on peut écrire  $((\mathbf{p} \cdot \mathbf{A} + \mathbf{A} \cdot \mathbf{p})u = 2\mathbf{A} \cdot \mathbf{p}u)$ . Le terme d'effet Zeeman se développe plus simplement :

$$\begin{aligned}
-\frac{q\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}_{int}) &= -\frac{q\hbar}{2m} \underbrace{\boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}_{int}^{(1)})}_{\text{ordre2}} - \frac{q\hbar}{2m} \underbrace{\boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}_{int}^{(2)})}_{\text{ordre3}} \\
&= -\frac{q\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}_{int}^{(1)}) + \vartheta(m^{-3}). \tag{3.92}
\end{aligned}$$

Enfin le terme de couplage spin-orbite noté  $SO$  fournit des contribution multiples mais dont on ne retient finalement qu'un seul terme :

$$\begin{aligned}
SO &= -\frac{q\hbar}{8m^2c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E}_{int} \wedge (\mathbf{p} - q\mathbf{A}_{int}) - (\mathbf{p} - q\mathbf{A}_{int}) \wedge \mathbf{E}_{int}) \\
&= \frac{q\hbar}{8m^2c^2} \underbrace{\boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla\Phi_{int}^{(0)} \wedge \mathbf{p} - \mathbf{p} \wedge \nabla\Phi_{int}^{(0)})}_{\text{ordre2}} - \frac{e\hbar}{8m^2c^2} \underbrace{\boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla\Phi_{int}^{(0)} \wedge q\mathbf{A}_{int}^{(1)} - q\mathbf{A}_{int}^{(1)} \wedge \nabla\Phi_{int}^{(0)})}_{\text{ordre3}} \\
&\quad + \frac{\boldsymbol{\sigma}}{m^2} \cdot \underbrace{(f(\Phi_{int}^{(0)}, \mathbf{A}_{int}^{(2)}) + f(\Phi_{int}^{(2)}, \mathbf{p}))}_{\text{ordre4}} + \frac{\boldsymbol{\sigma}}{m^2} \cdot \underbrace{f(\Phi_{int}^{(2)}, \mathbf{A}_{int}^{(1)})}_{\text{ordre5}} + \frac{\boldsymbol{\sigma}}{m^2} \cdot \underbrace{f(\Phi_{int}^{(2)}, \mathbf{A}_{int}^{(2)})}_{\text{ordre6}} \\
&= \frac{q\hbar}{8m^2c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla\Phi_{int}^{(0)} \wedge \mathbf{p} - \mathbf{p} \wedge \nabla\Phi_{int}^{(0)}) + \vartheta(m^{-3}). \tag{3.93}
\end{aligned}$$

Ainsi d'après (3.89), (3.90), (3.91), (3.92) et (3.93), le hamiltonien d'interaction rayonnement-matière au second ordre en  $1/m$  s'écrit :

$$\begin{aligned}
H_{inter} &= q\Phi_{int}^{(0)} - \frac{q}{m} \mathbf{A}_{int}^{(1)} \cdot \mathbf{p} - \frac{q\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}_{int}^{(1)}) + q\Phi_{int}^{(2)} \\
&\quad + \frac{q\hbar^2}{8m^2c^2} \Delta\Phi_{int}^{(0)} + \frac{q\hbar}{8m^2c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla\Phi_{int}^{(0)} \wedge \mathbf{p} - \mathbf{p} \wedge \nabla\Phi_{int}^{(0)}) + \vartheta(m^{-3}). \tag{3.94}
\end{aligned}$$

On constate que le terme  $\mathbf{A}_{int}^{(2)}$  n'est pas présent, c'est-à-dire que pour les termes d'interaction rayonnement-matière du second ordre en  $1/m$  il n'est pas nécessaire de considérer le courant  $\mathbf{j}^{(2)}$  donné par (3.87). On souhaite à présent écrire (3.94) sous une forme plus aboutie en remplaçant les sources  $\rho^{(0)}$ ,  $\rho^{(2)}$  et  $\mathbf{j}^{(1)}$  par (3.84), (3.85) et (3.86) dans l'expression des potentiels  $\mathbf{A}_{int}$ ,  $\Phi_{int}^{(0)}$  et  $\Phi_{int}^{(2)}$ . On rappelle que dans la section (3.2.2) nous avons établi la relation de continuité suivante :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho^{(0)} + \rho^{(2)}) + \nabla \cdot \mathbf{j}^{(1)} = 0. \tag{3.95}$$

**Remarques importantes et rappels concernant le deuxième chapitre**

L'étude présente est réalisée en l'absence de champ externe. L'expression (3.94) représente l'interaction rayonnement-matière du second ordre en  $1/m$  d'un électron avec les champs internes moyens créés par les autres électrons. Il serait naturel de **retrouver des éléments d'interaction ressemblant aux termes du hamiltonien de Breit-Pauli** au deuxième ordre en  $1/m$  présenté dans la section (2.1.3). Une théorie de champ moyen utilisant directement le hamiltonien de Breit-Pauli est réalisée dans la section (3.4.3) mais on choisit au préalable de rappeler certains aspects de ce hamiltonien afin de préparer la comparaison entre les deux méthodes dans la section (3.4.4). Ainsi, en résumant les résultats du deuxième chapitre, on rappelle la nature des termes du hamiltonien de Breit-Pauli et leurs origines dans le développement de FW du hamiltonien de Breit.

Nom	Expression	Origine
Contact	$-\frac{\pi\hbar^2 e^2}{m^2 c^2} \delta(r_{ij})$	Coulomb
Spin-orbite	$\frac{\hbar e^2}{4m^2 c^2 r_{ij}^3} (\boldsymbol{\sigma}_j \cdot \mathbf{l}_j - \boldsymbol{\sigma}_i \cdot \mathbf{l}_i)$	Coulomb
Non spin	$\frac{e^2}{2m^2 c^2} \left( \frac{\mathbf{p}_i \cdot \mathbf{p}_j}{r_{ij}} + \frac{\mathbf{r}_{ij} \cdot (\mathbf{r}_{ij} \cdot \mathbf{p}_i) \mathbf{p}_j}{r_{ij}^3} \right)$	Gaunt et jauge
Spin-autre-orbite	$\frac{2\hbar e^2}{4m^2 c^2 r_{ij}^3} (\boldsymbol{\sigma}_i \cdot \mathbf{l}_j - \boldsymbol{\sigma}_j \cdot \mathbf{l}_i)$	Gaunt et jauge
Spin-Spin	$-\frac{e^2 \hbar^2}{4m^2 c^2} \left( -8\pi \frac{\boldsymbol{\sigma}_i \cdot \boldsymbol{\sigma}_j}{3} \delta(r_{ij}) - \frac{\boldsymbol{\sigma}_i \cdot \boldsymbol{\sigma}_j}{r_{ij}^3} + 3 \frac{(\boldsymbol{\sigma}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})(\boldsymbol{\sigma}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{r_{ij}^5} \right)$	Gaunt et jauge

Ce rappel nous permettra dans les développements suivants, d'identifier parmi les termes de (3.94), lesquels doivent être reliés à une interaction de nature spin-orbite, contact, non-spin, spin-autre-orbite ou spin-spin, ainsi que les rôles joués par les différentes sources.

**Expression du hamiltonien d'interaction en fonction des sources sous la forme intégrale**

On remplace dans (3.94) les expressions  $\mathbf{A}_{int}^{(1)}$ ,  $\Phi_{int}^{(0)}$  et  $\Phi_{int}^{(2)}$  par leurs formes intégrales :

$$\begin{cases} \Phi_{int}^{(i)} = \frac{q}{4\pi\epsilon_0} \int \frac{d\mathbf{x}' \rho^{(i)}}{r} \\ \mathbf{A}_{int}^{(1)} = \frac{q}{2(4\pi\epsilon_0)c^2} \int d\mathbf{x}' \left( \frac{\mathbf{j}^{(1)}}{r} + \frac{\mathbf{r}(\mathbf{r} \cdot \mathbf{j}^{(1)})}{r^3} \right), \end{cases}$$

où les sources nécessaires sont :

$$\begin{aligned} \rho^{(0)} &= u^\dagger u \\ \rho^{(2)} &= u^\dagger u \frac{\hbar^2}{8m^2 c^2} \Delta - \frac{\hbar}{4m^2 c^2} u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{p}u \wedge \nabla) \\ \mathbf{j}^{(1)} &= \frac{i\hbar}{2m} (u \nabla u^\dagger - u^\dagger \nabla u) + \frac{\hbar}{2m} \nabla \wedge (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u). \end{aligned}$$

Dans l'expression de  $\mathbf{j}^{(1)}$ , on néglige le terme  $-\frac{q}{2m}\mathbf{A}u^\dagger u$ . La première raison est qu'il faudrait le remplacer à nouveau par son expression avec les sources, ce qui compliquerait les choses. La seconde est qu'il s'agit d'un terme d'ordre supérieur au deuxième ordre en  $1/m$ , étant donné que  $\mathbf{A}_{int}^{(1)}$  est déjà un opérateur du second ordre en  $1/m$ .

On notera  $e^2 \equiv \frac{q^2}{(4\pi\epsilon_0 c^2)}$  dans les expressions finales obtenues pour chaque terme. Ainsi l'**opérateur de Coulomb** se précise avec les expressions de  $\rho^{(0)}$  et de  $\rho^{(2)}$  :

$$\begin{aligned} q\Phi_{int} &= q\Phi_{int}^{(0)} + q\Phi_{int}^{(2)} \\ &= e^2 \int d\mathbf{x}' \frac{u^\dagger u}{r} + \frac{e^2 \hbar^2}{8m^2 c^2} \int d\mathbf{x}' u^\dagger \Delta \frac{1}{r} u - \frac{e^2 \hbar}{4m^2 c^2} \int d\mathbf{x}' u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \mathbf{p} \wedge \nabla \left( \frac{1}{r} \right) \right) u. \end{aligned} \quad (3.96)$$

Le premier terme de (3.96) correspond logiquement au potentiel moyen de Hartree. Les deux derniers termes, issus de la correction de la densité au deuxième ordre en  $1/m$  font apparaître un terme moyen de contact ainsi qu'un terme représentant l'interaction spin-orbite moyenne de l'ensemble des particules. La contribution du **terme de Darwin** donne également un terme de contact mais exprimé un peu différemment :

$$\frac{q\hbar^2}{8m^2 c^2} \Delta \Phi_{int}^{(0)} = \frac{e^2 \hbar^2}{8m^2 c^2} \Delta \left( \int d\mathbf{x}' \frac{u^\dagger u}{r} \right). \quad (3.97)$$

Examinons ensuite l'**opérateur spin-orbite** noté  $SO$ , que l'on transforme en utilisant la propriété  $\nabla \wedge (\nabla \Phi) = 0$  :

$$\begin{aligned} SO &= \frac{q\hbar}{8m^2 c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \nabla \Phi_{int}^{(0)} \wedge \mathbf{p} - \mathbf{p} \wedge \nabla \Phi_{int}^{(0)} \right) = \frac{q\hbar}{8m^2 c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( 2\nabla \Phi_{int}^{(0)} \wedge \mathbf{p} + i\hbar \nabla \wedge \nabla \Phi_{int}^{(0)} \right) \\ &= \frac{q\hbar}{8m^2 c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( 2\nabla \Phi_{int}^{(0)} \wedge \mathbf{p} \right) \\ &= \frac{e^2 \hbar}{4m^2 c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \nabla \left( \int d\mathbf{x}' \frac{u^\dagger u}{r} \right) \wedge \mathbf{p} \right). \end{aligned} \quad (3.98)$$

Le terme (3.98) représente un couplage de type spin-orbite avec le champ électrique moyen produit par l'ensemble des particules. On transforme à présent le terme de couplage entre l'impulsion  $\mathbf{p}$  et le potentiel vecteur moyen  $\mathbf{A}_{int}^{(1)}$ , pour lequel on réalise une double différenciation. On sépare tout d'abord les contributions orbitale et de spin provenant du courant  $\mathbf{j}^{(1)}$  au premier ordre en  $1/m$ , puis les deux formes contenant le courant qui sont l'équivalent des termes de Gaunt et des termes de jauge.

$$\begin{aligned} \mathbf{j}^{(1)} &= \mathbf{j}_{orb} + \mathbf{j}_{spin} = \frac{iq\hbar}{2m} (u\nabla u^\dagger - u^\dagger \nabla u) + \frac{q\hbar}{2m} \nabla \wedge (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u) \\ \mathbf{A}_{int}^{(1)} &= \mathbf{A}_G^{(1)} + \mathbf{A}_j^{(1)} \propto \frac{\mathbf{j}^{(1)}}{r} + \frac{\mathbf{r}(\mathbf{j}^{(1)} \cdot \mathbf{r})}{r^3}. \end{aligned}$$

On obtient alors quatre termes :

$$\begin{aligned} -\frac{q}{m} \mathbf{A}_{int}^{(1)} \cdot \mathbf{p} &= -\frac{q}{m} \frac{q}{2(4\pi\epsilon_0 c^2)} \int d\mathbf{x}' \left( \frac{\mathbf{j}^{(1)}}{r} + \frac{\mathbf{r}(\mathbf{j}^{(1)} \cdot \mathbf{r})}{r^3} \right) \cdot \mathbf{p} \\ &= -\frac{e^2}{2mc^2} \left( \int d\mathbf{x}' \left( \frac{\mathbf{j}_{orb}}{r} + \frac{\mathbf{r}(\mathbf{j}_{orb} \cdot \mathbf{r})}{r^3} \right) \cdot \mathbf{p} + \int d\mathbf{x}' \left( \frac{\mathbf{j}_{spin}}{r} + \frac{\mathbf{r}(\mathbf{j}_{spin} \cdot \mathbf{r})}{r^3} \right) \cdot \mathbf{p} \right). \end{aligned} \quad (3.99)$$

On regroupe dans (3.100) les éléments issus des termes orbitaux représentant des **éléments d'interaction "non-spin"** provenant d'un terme de type Gaunt noté (3.99) $_{nsG}$  et d'un terme de type jauge

noté  $(3.99)_{nsJ}$  :

$$\begin{aligned} (3.99)_{nsG} &= -\frac{i\hbar e^2}{4m^2 c^2} \left( \int d\mathbf{x}' \left( \frac{u\nabla u^\dagger}{r} - \frac{u^\dagger\nabla u}{r} \right) \cdot \mathbf{p} \right) \\ (3.99)_{nsJ} &= -\frac{i\hbar e^2}{4m^2 c^2} \left( \int d\mathbf{x}' \left( \frac{\mathbf{r}(u\nabla u^\dagger \cdot \mathbf{r})}{r^3} - \frac{\mathbf{r}(u^\dagger\nabla u \cdot \mathbf{r})}{r^3} \right) \cdot \mathbf{p} \right). \end{aligned} \quad (3.100)$$

Les autres termes (3.99) impliquant le courant de spin semblent être des **éléments de couplage spin-autre-orbite**. Ils sont réunis dans (3.101) et noté respectivement  $(3.99)_{saoG}$  et  $(3.99)_{saoJ}$

$$\begin{aligned} (3.99)_{saoG} &= -\frac{\hbar e^2}{4m^2 c^2} \left( \int d\mathbf{x}' \left( \frac{\nabla \wedge (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u)}{r} \right) \cdot \mathbf{p} \right) \\ (3.99)_{saoJ} &= -\frac{\hbar e^2}{4m^2 c^2} \left( \int d\mathbf{x}' \left( \frac{\mathbf{r}(\nabla \wedge (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u) \cdot \mathbf{r})}{r^3} \right) \cdot \mathbf{p} \right). \end{aligned} \quad (3.101)$$

Il nous reste à déterminer les termes provenant de l'**effet Zeeman** qui donnent également quatre contributions :

$$\begin{aligned} -\frac{q\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}_{int}^{(1)}) &= -\frac{q\hbar}{2m} \frac{q}{2(4\pi\epsilon_0 c^2)} \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \nabla \wedge \int d\mathbf{x}' \left( \frac{\mathbf{j}^{(1)}}{r} + \frac{\mathbf{r}(\mathbf{j}^{(1)} \cdot \mathbf{r})}{r^3} \right) \right) \\ &= -\frac{e^2 \hbar}{4m c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \nabla \wedge \int d\mathbf{x}' \left( \frac{\mathbf{j}_{orb}}{r} + \frac{\mathbf{r}(\mathbf{j}_{orb} \cdot \mathbf{r})}{r^3} + \frac{\mathbf{j}_{spin}}{r} + \frac{\mathbf{r}(\mathbf{j}_{spin} \cdot \mathbf{r})}{r^3} \right) \right). \end{aligned} \quad (3.102)$$

Il apparait aussi un terme d'interaction **spin-autre-orbite** provenant des termes orbitaux de type Gaunt et de type jauge noté  $(3.102)_{sao(J+G)}$ .

$$(3.102)_{sao(J+G)} = -\frac{ie^2 \hbar^2}{8m^2 c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \nabla \wedge \int d\mathbf{x}' \left( \frac{u\nabla u^\dagger}{r} - \frac{u^\dagger\nabla u}{r} \right) + \nabla \wedge \int d\mathbf{x}' \left( \frac{\mathbf{r}(u\nabla u^\dagger \cdot \mathbf{r})}{r^3} - \frac{\mathbf{r}(u^\dagger\nabla u \cdot \mathbf{r})}{r^3} \right) \right). \quad (3.103)$$

Enfin, on retrouve des éléments **d'interaction spin-spin** provenant du courant de spin des termes de type Gaunt et jauge. On les note  $(3.102)_{ss(j+G)}$  :

$$(3.102)_{ss(j+G)} = -\frac{e^2 \hbar^2}{8m^2 c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \nabla \wedge \int d\mathbf{x}' \left( \frac{\nabla \wedge (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u)}{r} \right) + \nabla \wedge \int d\mathbf{x}' \left( \frac{\mathbf{r}(\nabla \wedge (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u) \cdot \mathbf{r})}{r^3} \right) \right). \quad (3.104)$$

Nous sommes à présent en mesure, à l'aide des formules (3.96), (3.97), (3.98), (3.100), (3.101), (3.103) et (3.104) de donner la forme intégrale des éléments d'interaction rayonnement-matière au second ordre en  $1/m$ . L'expression totale est donnée en (3.105). On rappelle auparavant, dans le tableau ci-dessous, l'origine des termes d'interaction du second ordre en  $1/m$  dans le hamiltonien monoélectronique de FW en interaction avec le champ électromagnétique interne moyen produit par l'ensemble des électrons du système.

Nature \ Origine	Coulomb		Darwin	Spin-orbite
	Ordre 0 ( $\rho^{(0)}$ )	Ordre 2 ( $\rho^{(2)}$ )		
Terme de Coulomb	(3.96)			
Termes de Contact		(3.96)	(3.97)	
Termes de Spin-orbite		(3.96)		(3.98)

Le premier tableau montre quels sont les termes d'interaction rayonnement-matière du hamiltonien de Foldy-Wouthuysen du deuxième ordre qui permettent de retrouver les termes de Coulomb, les termes de contact et les termes d'interaction spin-orbite. Dans le développement du hamiltonien de Breit-Pauli du deuxième chapitre, ces termes proviennent de la diagonalisation de la TFW au deuxième ordre de l'opérateur coulombien.

Nature \ Origine	$\mathbf{p} \cdot \mathbf{A}$				Zeeman			
	Gaunt Orbital	Spin	jauge Orbital	Spin	Gaunt Orbital	Spin	jauge Orbital	Spin
Termes Non-Spin	(3.100)		(3.100)					
Termes Autre-orbite		(3.101)		(3.101)	(3.103)		(3.103)	
Termes Spin-Spin						(3.104)		(3.104)

Le second tableau présente les termes d'interaction rayonnement-matière du hamiltonien de Foldy-Wouthuysen du deuxième ordre en  $1/m$  qui conduisent aux termes d'interaction non-spin, aux termes d'interaction spin-autre-orbite et aux termes d'interaction spin-spin. Dans le développement du hamiltonien de Breit-Pauli du deuxième chapitre, ces termes proviennent de la diagonalisation de la TFW au deuxième ordre des opérateurs de Gaunt et de jauge.

Le hamiltonien d'interaction rayonnement-matière du modèle de champ moyen auto-cohérent avec

les équations de Maxwell au second ordre en  $1/m$  s'écrivent :

$$\begin{aligned}
H_{inter} &= e^2 \int d\mathbf{x}' \frac{u^\dagger u}{r} \\
\text{contact} &\left\{ + \frac{e^2 \hbar^2}{8m^2 c^2} \Delta \left( \int d\mathbf{x}' \frac{u^\dagger u}{r} \right) + \frac{e^2 \hbar^2}{8m^2 c^2} \int d\mathbf{x}' u^\dagger \Delta \frac{1}{r} u \right. \\
\text{spin - orbite} &\left\{ - \frac{e^2 \hbar}{4m^2 c^2} \int d\mathbf{x}' u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \mathbf{p} \wedge \nabla \left( \frac{1}{r} \right) \right) u + \frac{e^2 \hbar}{4m^2 c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \nabla \left( \int d\mathbf{x}' \frac{u^\dagger u}{r} \right) \wedge \mathbf{p} \right) \right. \\
\text{non - spin} &\left\{ - \frac{ie^2 \hbar}{4m^2 c^2} \left( \int d\mathbf{x}' \left( \frac{u \nabla u^\dagger}{r} - \frac{u^\dagger \nabla u}{r} \right) \cdot \mathbf{p} + \int d\mathbf{x}' \left( \frac{\mathbf{r}(u \nabla u^\dagger \cdot \mathbf{r})}{r^3} - \frac{\mathbf{r}(u^\dagger \nabla u \cdot \mathbf{r})}{r^3} \right) \cdot \mathbf{p} \right) \right. \\
\text{spin -} &\left\{ - \frac{e^2 \hbar}{4m^2 c^2} \left( \int d\mathbf{x}' \left( \frac{\nabla \wedge (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u)}{r} \right) \cdot \mathbf{p} + \int d\mathbf{x}' \left( \frac{\mathbf{r}(\nabla \wedge (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u) \cdot \mathbf{r})}{r^3} \right) \cdot \mathbf{p} \right) \right. \\
\text{autre -} & \\
\text{orbite} &- \frac{ie^2 \hbar^2}{8m^2 c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \nabla \wedge \int d\mathbf{x}' \left( \frac{u \nabla u^\dagger}{r} - \frac{u^\dagger \nabla u}{r} \right) + \nabla \wedge \int d\mathbf{x}' \left( \frac{\mathbf{r}(u \nabla u^\dagger \cdot \mathbf{r})}{r^3} - \frac{\mathbf{r}(u^\dagger \nabla u \cdot \mathbf{r})}{r^3} \right) \right) \\
\text{spin - spin} &\left\{ - \frac{e^2 \hbar^2}{8m^2 c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \nabla \wedge \int d\mathbf{x}' \left( \frac{\nabla \wedge (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u)}{r} \right) + \nabla \wedge \int d\mathbf{x}' \left( \frac{\mathbf{r}(\nabla \wedge (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u) \cdot \mathbf{r})}{r^3} \right) \right) \right\}. \quad (3.105)
\end{aligned}$$

### 3.4.3 Equations de Hartree-Breit-Pauli

On réalise à présent une théorie de champ moyen au second ordre en  $1/m$  selon la méthode de Hartree à partir du hamiltonien de Breit-Pauli. Le hamiltonien de Breit-Pauli représente la correction au deuxième ordre en  $(1/m)$  de l'interaction électromagnétique de deux particules en jauge de Coulomb. On rappelle son expression :

$$\begin{aligned}
H_{ij}^{BP} &= -\frac{\pi \hbar^2 e^2}{m^2 c^2} \delta(r_{ij}) - \frac{e^2}{2m^2 c^2} \left( \frac{\mathbf{p}_i \cdot \mathbf{p}_j}{r_{ij}} + \frac{\mathbf{r}_{ij} \cdot (\mathbf{r}_{ij} \cdot \mathbf{p}_i) \mathbf{p}_j}{r_{ij}^3} \right) \\
&+ \frac{\hbar e^2}{4m^2 c^2 r_{ij}^3} ((\boldsymbol{\sigma}_j + 2\boldsymbol{\sigma}_i) \cdot \mathbf{l}_j - (\boldsymbol{\sigma}_i + 2\boldsymbol{\sigma}_j) \cdot \mathbf{l}_i) \\
&- \frac{e^2 \hbar^2}{4m^2 c^2} \left( -8\pi \frac{\boldsymbol{\sigma}_i \cdot \boldsymbol{\sigma}_j}{3} \delta(r_{ij}) - \frac{\boldsymbol{\sigma}_i \cdot \boldsymbol{\sigma}_j}{r_{ij}^3} + 3 \frac{(\boldsymbol{\sigma}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})(\boldsymbol{\sigma}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{r_{ij}^5} \right). \quad (3.106)
\end{aligned}$$

Si on considère un système de  $N$  électrons en interaction en l'absence de champ externe le hamiltonien exact du système s'écrit :

$$H = \sum_{i=1}^N T_i + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j}^N K_{ij} + \frac{1}{2} \sum_{k=1}^{10} \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j}^N H_{ij}^{BP(k)}. \quad (3.107)$$

où la somme sur  $k = 1, \dots, 10$  représente les 10 termes de l'équation (3.106). A l'aide de l'expression de la fonction d'onde de Hartree  $\Psi = \Psi(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_N) = \phi_1(\mathbf{r}_1) \phi_2(\mathbf{r}_2) \dots \phi_N(\mathbf{r}_N)$  la valeur moyenne de l'énergie vaut :

$$E = \langle H \rangle = \sum_{i=1}^N \langle T_i \rangle + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j}^N \langle K_{ij} \rangle + \frac{1}{2} \sum_{k=1}^{10} \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j}^N \langle H_{ij}^{BP(k)} \rangle. \quad (3.108)$$

On détaille ci-dessous les expressions des valeurs moyennes de chaque opérateur  $H_{ij}^{BP(k)}$  en notant  $b_k$  leur coefficient numérique. Les termes pour  $k = 1, \dots, 3$  représentent les opérateurs qui ne contiennent pas de spin :

$$\begin{aligned}
\langle H_{ij}^{BP(1)} \rangle &= \left\langle -\frac{\pi \hbar^2 e^2}{m^2 c^2} \delta(r_{ij}) \right\rangle \\
&= b_1 \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j \phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \delta(r_{ij}) \phi_i(\mathbf{r}_i) \phi_j(\mathbf{r}_j), \\
\langle H_{ij}^{BP(2)} \rangle &= \left\langle -\frac{e^2}{2m^2 c^2} \frac{\mathbf{p}_i \cdot \mathbf{p}_j}{r_{ij}} \right\rangle \\
&= b_2 \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j \phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{\mathbf{p}_i \cdot \mathbf{p}_j}{r_{ij}} \phi_i(\mathbf{r}_i) \phi_j(\mathbf{r}_j), \\
\langle H_{ij}^{BP(3)} \rangle &= \left\langle -\frac{e^2}{2m^2 c^2} \frac{\mathbf{r}_{ij} \cdot (\mathbf{r}_{ij} \cdot \mathbf{p}_i) \mathbf{p}_j}{r_{ij}^3} \right\rangle \\
&= b_3 \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j \phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{\mathbf{r}_{ij} \cdot (\mathbf{r}_{ij} \cdot \mathbf{p}_i) \mathbf{p}_j}{r_{ij}^3} \phi_i(\mathbf{r}_i) \phi_j(\mathbf{r}_j).
\end{aligned}$$

Les termes allant de  $k = 4, \dots, 7$  correspondent aux opérateurs de spin-orbite et de spin-autre orbite :

$$\begin{aligned}
\langle H_{ij}^{BP(4)} \rangle &= \left\langle \frac{\hbar e^2}{4m^2 c^2 r_{ij}^3} \boldsymbol{\sigma}_j \cdot \mathbf{l}_j \right\rangle \\
&= b_4 \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j \phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \boldsymbol{\sigma}_j \cdot \left( \frac{\mathbf{r}_{ij}}{r_{ij}^3} \wedge \mathbf{p}_j \right) \phi_i(\mathbf{r}_i) \phi_j(\mathbf{r}_j), \\
\langle H_{ij}^{BP(5)} \rangle &= \left\langle \frac{\hbar e^2}{4m^2 c^2 r_{ij}^3} \boldsymbol{\sigma}_i \cdot \mathbf{l}_i \right\rangle \\
&= b_5 \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j \phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \boldsymbol{\sigma}_i \cdot \left( \frac{\mathbf{r}_{ij}}{r_{ij}^3} \wedge \mathbf{p}_i \right) \phi_i(\mathbf{r}_i) \phi_j(\mathbf{r}_j), \\
\langle H_{ij}^{BP(6)} \rangle &= \left\langle \frac{\hbar e^2}{4m^2 c^2 r_{ij}^3} 2\boldsymbol{\sigma}_i \cdot \mathbf{l}_j \right\rangle \\
&= b_6 \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j \phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \boldsymbol{\sigma}_i \cdot \left( \frac{\mathbf{r}_{ij}}{r_{ij}^3} \wedge \mathbf{p}_j \right) \phi_i(\mathbf{r}_i) \phi_j(\mathbf{r}_j), \\
\langle H_{ij}^{BP(7)} \rangle &= \left\langle \frac{\hbar e^2}{4m^2 c^2 r_{12}^3} 2\boldsymbol{\sigma}_j \cdot \mathbf{l}_i \right\rangle \\
&= b_7 \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j \phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \boldsymbol{\sigma}_j \cdot \left( \frac{\mathbf{r}_{ij}}{r_{ij}^3} \wedge \mathbf{p}_i \right) \phi_i(\mathbf{r}_i) \phi_j(\mathbf{r}_j).
\end{aligned}$$

Enfin, les trois derniers termes  $k = 8, \dots, 10$  représentent les opérateurs de l'interaction spin-spin :

$$\begin{aligned}
\langle H_{ij}^{BP(8)} \rangle &= \left\langle \frac{e^2 \hbar^2}{4m^2 c^2} 8\pi \frac{\boldsymbol{\sigma}_i \cdot \boldsymbol{\sigma}_j}{3} \delta(r_{ij}) \right\rangle \\
&= b_8 \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j \phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{\boldsymbol{\sigma}_i \cdot \boldsymbol{\sigma}_j}{3} \delta(r_{ij}) \phi_i(\mathbf{r}_i) \phi_j(\mathbf{r}_j), \\
\langle H_{ij}^{BP(9)} \rangle &= \left\langle \frac{e^2 \hbar^2}{4m^2 c^2} \frac{\boldsymbol{\sigma}_i \cdot \boldsymbol{\sigma}_j}{r_{ij}^3} \right\rangle \\
&= b_9 \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j \phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{\boldsymbol{\sigma}_i \cdot \boldsymbol{\sigma}_j}{r_{ij}^3} \phi_i(\mathbf{r}_i) \phi_j(\mathbf{r}_j), \\
\langle H_{ij}^{BP(10)} \rangle &= \left\langle \frac{-e^2 \hbar^2}{4m^2 c^2} 3 \frac{(\boldsymbol{\sigma}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})(\boldsymbol{\sigma}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{r_{ij}^5} \right\rangle \\
&= b_{10} \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j \phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{(\boldsymbol{\sigma}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})(\boldsymbol{\sigma}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{r_{ij}^5} \phi_i(\mathbf{r}_i) \phi_j(\mathbf{r}_j).
\end{aligned}$$

### Minimalisation

On cherche à déterminer  $\phi_i$  et  $\phi_i^\dagger$  de telle sorte que (3.108) soit minimale. On utilise la méthode de Lagrange en fabriquant la fonctionnelle  $F(\phi_i^\dagger, \phi_i)$  :

$$F(\phi_i^\dagger, \phi_i) = E_H(\phi_i^\dagger, \phi_i) + H_{ns}(\phi_i^\dagger, \phi_i) + H_{so}(\phi_i^\dagger, \phi_i) + H_{ss}(\phi_i^\dagger, \phi_i),$$

avec :

$$\begin{aligned}
E_H(\phi_i^\dagger, \phi_i) &= \sum_{i=1}^N \langle T_i \rangle + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} \langle K_{ij} \rangle - \sum_{i=1}^N \epsilon_i \langle \phi_i | \phi_i^\dagger \rangle, \\
H_{ns}(\phi_i^\dagger, \phi_i) &= \frac{1}{2} \sum_{k=1}^3 \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} H_{ij}^{BP(k)}, \\
H_{so}(\phi_i^\dagger, \phi_i) &= \frac{1}{2} \sum_{k=4}^7 \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} H_{ij}^{BP(k)}, \\
H_{ss}(\phi_i^\dagger, \phi_i) &= \frac{1}{2} \sum_{k=8}^{10} \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} H_{ij}^{BP(k)}.
\end{aligned}$$

On cherche donc à minimiser  $F(\phi_i^\dagger, \phi_i)$  de telle manière à obtenir une équation du type :

$$\begin{aligned}
\delta F(\phi_i^\dagger, \phi_i) &= \sum_{i=1}^N \delta \phi_i^\dagger ((\hat{h}_i + \hat{h}_{i(ns)} + \hat{h}_{i(so)} + \hat{h}_{i(ss)}) \phi_i) \\
&\quad + \sum_{i=1}^N (\delta \phi_i^\dagger)^* ((\hat{h}_i^* + \hat{h}_{i(ns)}^* + \hat{h}_{i(so)}^* + \hat{h}_{i(ss)}^*) \phi_i^*) = 0. \tag{3.109}
\end{aligned}$$

Pour cela on invoquera la symétrie des opérateurs d'interaction  $H_{ij}^{BP(k)}$  c'est-à-dire que l'on écrira directement :

$$\begin{aligned}
&\frac{1}{2} \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j (\delta \phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) + \phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \delta \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j)) B_{ij}^{(k)} \phi_i(\mathbf{r}_i) \phi_j(\mathbf{r}_j) \\
&= \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j \delta \phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) B_{ij}^{(k)} \phi_i(\mathbf{r}_i) \phi_j(\mathbf{r}_j).
\end{aligned}$$

**Termes d'interaction non-spin**

On calcule  $\delta H_{ns}(\phi_i^\dagger, \phi_i)$  où  $H_{ns}(\phi_i^\dagger, \phi_i)$  est la fonctionnelle qui regroupe tous les termes non spin pour obtenir une équation du type :

$$\delta H_{ns}(\phi_i^\dagger, \phi_i) = \sum_{i=1}^N \delta \phi_i^\dagger \left( \hat{h}_{i(ns)} \phi_i \right) + \sum_{i=1}^N (\delta \phi_i^\dagger)^* \left( \hat{h}_{i(ns)}^* \phi_i^* \right) = 0. \quad (3.110)$$

Le premier terme de (3.110) s'obtient aisément et correspond au terme noté (3.111) contrairement au second correspondant à (3.112) où il faut pouvoir permuter  $\delta \phi_i$  et  $\phi_i^\dagger$  dans les deuxième et troisième membres. Ceci est possible pour le deuxième car  $\langle \phi_i | \mathbf{p} | \delta \phi_i \rangle = (\langle \delta \phi_i | \mathbf{p} | \phi_i \rangle)^*$ .

$$\begin{aligned} \delta H_{ns}(\phi_i^*, \phi_i) &= \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i \delta \phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \left( b_1 \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \delta(r_{ij}) \phi_j(\mathbf{r}_j) + b_2 \mathbf{p}_i \cdot \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{\mathbf{p}_j}{r_{ij}} \phi_j(\mathbf{r}_j) \right. \\ &\quad \left. + b_3 \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{\mathbf{r}_{ij} \cdot (\mathbf{r}_{ij} \cdot \mathbf{p}_i) \mathbf{p}_j}{r_{ij}^3} \phi_j(\mathbf{r}_j) \right) \phi_i(\mathbf{r}_i) \quad (3.111) \\ &+ \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i (\delta \phi_i^\dagger)^* \left( b_1 \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \delta(r_{ij}) \phi_j(\mathbf{r}_j) \right. \\ &\quad \left. + b_2 \mathbf{p}_i^* \cdot \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{\mathbf{p}_j}{r_{ij}} \phi_j(\mathbf{r}_j) \right. \\ &\quad \left. + b_3 \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{\mathbf{r}_{ij} \cdot (\mathbf{r}_{ij} \cdot \mathbf{p}_i) \mathbf{p}_j}{r_{ij}^3} \phi_j(\mathbf{r}_j) \right) \phi_i^*(\mathbf{r}_i). \quad (3.112) \end{aligned}$$

On peut donc donner l'expression du hamiltonien monoélectronique de la partie non spin :

$$\begin{aligned} h_{i-ns} &= b_1 \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \delta(r_{ij}) \phi_j(\mathbf{r}_j) + b_2 \mathbf{p}_i \cdot \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{\mathbf{p}_j}{r_{ij}} \phi_j(\mathbf{r}_j) \\ &+ b_3 \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{\mathbf{r}_{ij} \cdot (\mathbf{r}_{ij} \cdot \mathbf{p}_i) \mathbf{p}_j}{r_{ij}^3} \phi_j(\mathbf{r}_j). \quad (3.113) \end{aligned}$$

Remarque :

En raison de la non commutativité des opérateurs position et impulsion on laisse en l'état pour l'instant le dernier terme avec  $\mathbf{p}_i$  sous l'intégrale par rapport à  $j$ .

**Termes d'interaction spin-orbite et spin autre-orbite**

On note  $H_{so}(\phi_i^\dagger, \phi_i)$  la fonctionnelle qui regroupe tous les termes de spin-orbite et on cherche à établir une équation du type :

$$\delta H_{so}(\phi_i^\dagger, \phi_i) = \sum_{i=1}^N \delta \phi_i^\dagger \left( \hat{h}_{i(so)} \phi_i \right) + \sum_{i=1}^N (\delta \phi_i^\dagger)^* \left( \hat{h}_{i(so)}^* \phi_i^* \right) = 0. \quad (3.114)$$

Comme précédemment le premier terme de (3.114) se calcule directement et correspond à (3.115). En revanche, pour le second s'identifiant à (3.116), la permutation entre  $\delta \phi_i$  et  $\phi_i^\dagger$  pose problème mais en

utilisant  $\langle \phi_i | \mathbf{p} | \delta\phi_i \rangle = (\langle \delta\phi_i | \mathbf{p} | \phi_i \rangle)^*$  et  $\langle \phi_i | \boldsymbol{\sigma} | \delta\phi_i \rangle = (\langle \delta\phi_i | \boldsymbol{\sigma} | \phi_i \rangle)^*$  on obtient :

$$\begin{aligned} \delta H_{so}(\phi_i^*, \phi_i) &= \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i \delta\phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \left( -b_5 \boldsymbol{\sigma}_i \cdot \left( \mathbf{p}_i \wedge \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{\mathbf{r}_{ij}}{r_{ij}^3} \phi_j(\mathbf{r}_j) \right) \right. \\ &\quad + b_4 \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \boldsymbol{\sigma}_j \cdot \left( \frac{\mathbf{r}_{ij}}{r_{ij}^3} \wedge \mathbf{p}_j \right) \phi_j(\mathbf{r}_j) \\ &\quad + b_6 \boldsymbol{\sigma}_i \cdot \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \left( \frac{\mathbf{r}_{ij}}{r_{ij}^3} \wedge \mathbf{p}_j \right) \phi_j(\mathbf{r}_j) \\ &\quad \left. + b_7 \mathbf{p}_i \cdot \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \left( \boldsymbol{\sigma}_j \wedge \frac{\mathbf{r}_{ij}}{r_{ij}^3} \right) \phi_j(\mathbf{r}_j) \right) \phi_i(\mathbf{r}_i) \end{aligned} \quad (3.115)$$

$$\begin{aligned} &+ \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i (\delta\phi_i^\dagger)^* \left( -b_5 \boldsymbol{\sigma}_i^* \cdot \left( \mathbf{p}_i^* \wedge \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{\mathbf{r}_{ij}}{r_{ij}^3} \phi_j(\mathbf{r}_j) \right) \right. \\ &\quad + b_4 \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \boldsymbol{\sigma}_j \cdot \left( \frac{\mathbf{r}_{ij}}{r_{ij}^3} \wedge \mathbf{p}_j \right) \phi_j(\mathbf{r}_j) \\ &\quad + b_6 \boldsymbol{\sigma}_i^* \cdot \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \left( \frac{\mathbf{r}_{ij}}{r_{ij}^3} \wedge \mathbf{p}_j \right) \phi_j(\mathbf{r}_j) \\ &\quad \left. + b_7 \mathbf{p}_i^* \cdot \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \left( \boldsymbol{\sigma}_j \wedge \frac{\mathbf{r}_{ij}}{r_{ij}^3} \right) \phi_j(\mathbf{r}_j) \right) \phi_i^*(\mathbf{r}_i). \end{aligned} \quad (3.116)$$

L'hamiltonien monoélectronique du couplage spin-orbite est donc :

$$\begin{aligned} h_{i-so} &= -b_5 \boldsymbol{\sigma}_i \cdot \left( \mathbf{p}_i \wedge \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{\mathbf{r}_{ij}}{r_{ij}^3} \phi_j(\mathbf{r}_j) \right) + b_4 \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \boldsymbol{\sigma}_j \cdot \left( \frac{\mathbf{r}_{ij}}{r_{ij}^3} \wedge \mathbf{p}_j \right) \phi_j(\mathbf{r}_j) \\ &\quad + b_6 \boldsymbol{\sigma}_i \cdot \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \left( \frac{\mathbf{r}_{ij}}{r_{ij}^3} \wedge \mathbf{p}_j \right) \phi_j(\mathbf{r}_j) + b_7 \mathbf{p}_i \cdot \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \left( \boldsymbol{\sigma}_j \wedge \frac{\mathbf{r}_{ij}}{r_{ij}^3} \right) \phi_j(\mathbf{r}_j). \end{aligned} \quad (3.117)$$

### Termes d'interaction spin-spin

Enfin, avec  $H_{ss}(\phi_i^\dagger, \phi_i)$  la fonctionnelle qui regroupe tous les termes d'interaction spin-spin, on cherche une équation du type :

$$\delta H_{ss}(\phi_i^\dagger, \phi_i) = \sum_{i=1}^N \delta\phi_i^\dagger \left( \hat{h}_{i(ss)} \phi_i \right) + \sum_{i=1}^N (\delta\phi_i^\dagger)^* \left( \hat{h}_{i(ss)}^* \phi_i^* \right) = 0. \quad (3.118)$$

Le premier terme de (3.118) correspond directement à (3.119). Le second s'identifie bien à (3.120) si on peut permuter  $\delta\phi_i$  et  $\phi_i^\dagger$  c'est-à-dire utiliser  $\langle \phi_i(\mathbf{r}_i) | \boldsymbol{\sigma}_i | \delta\phi_i(\mathbf{r}_i) \rangle = (\langle \delta\phi_i(\mathbf{r}_i) | \boldsymbol{\sigma}_i | \phi_i(\mathbf{r}_i) \rangle)^*$  :

$$\begin{aligned} \delta H_{ss}(\phi_i^*, \phi_i) = & \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i \delta\phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \left( b_8 \boldsymbol{\sigma}_i \cdot \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{\boldsymbol{\sigma}_j}{3} \delta(r_{ij}) \phi_j(\mathbf{r}_j) \right. \\ & + b_9 \boldsymbol{\sigma}_i \cdot \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{\boldsymbol{\sigma}_j}{r_{ij}^3} \phi_j(\mathbf{r}_j) \\ & \left. + b_{10} \boldsymbol{\sigma}_i \cdot \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{\mathbf{r}_{ij}(\boldsymbol{\sigma}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{r_{ij}^5} \phi_j(\mathbf{r}_j) \right) \phi_i(\mathbf{r}_i) \quad (3.119) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} + \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i (\delta\phi_i^\dagger)^*(\mathbf{r}_i) \left( b_8 \boldsymbol{\sigma}_i^* \cdot \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{\boldsymbol{\sigma}_j}{3} \delta(r_{ij}) \phi_j(\mathbf{r}_j) \right. \\ + b_9 \boldsymbol{\sigma}_i^* \cdot \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{\boldsymbol{\sigma}_j}{r_{ij}^3} \phi_j(\mathbf{r}_j) \\ \left. + b_{10} \boldsymbol{\sigma}_i^* \cdot \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{\mathbf{r}_{ij}(\boldsymbol{\sigma}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{r_{ij}^5} \phi_j(\mathbf{r}_j) \right) \phi_i^*(\mathbf{r}_i). \quad (3.120) \end{aligned}$$

Ceci permet d'écrire le hamiltonien monoélectronique de la partie spin-spin :

$$\begin{aligned} h_{i-ss} = & b_8 \boldsymbol{\sigma}_i \cdot \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{\boldsymbol{\sigma}_j}{3} \delta(r_{ij}) \phi_j(\mathbf{r}_j) + b_9 \boldsymbol{\sigma}_i \cdot \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{\boldsymbol{\sigma}_j}{r_{ij}^3} \phi_j(\mathbf{r}_j) \\ & + b_{10} \boldsymbol{\sigma}_i \cdot \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{\mathbf{r}_{ij}(\boldsymbol{\sigma}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{r_{ij}^5} \phi_j(\mathbf{r}_j). \quad (3.121) \end{aligned}$$

### Hamiltonien total

Enfin, en regroupant les formules (3.113), (3.117) et (3.121) et en remplaçant les coefficients  $b_k$  par leur valeur on obtient  $N$  équations indépendantes pour chaque électron  $i$  :

$$\left( \frac{\mathbf{p}^2}{2m} + h_{BP} \right) \phi_i(\mathbf{r}_i) = \epsilon_i \phi_i(\mathbf{r}_i).$$

La quantité  $h_{BP}$  représente le champ moyen de l'interaction du second ordre en  $1/m$  obtenu à partir du hamiltonien de Breit-Pauli :

$$\begin{aligned}
h_{BP} &= e^2 \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{1}{r_{ij}} \phi_j(\mathbf{r}_j) \\
\text{contact} &\left\{ -\frac{\pi \hbar^2 e^2}{m^2 c^2} \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \delta(r_{ij}) \phi_j(\mathbf{r}_j) \right. \\
\text{non - spin} &\left\{ -\frac{e^2}{2m^2 c^2} \mathbf{p}_i \cdot \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{\mathbf{p}_j}{r_{ij}} \phi_j(\mathbf{r}_j) - \frac{e^2}{2m^2 c^2} \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{\mathbf{r}_{ij} \cdot (\mathbf{r}_{ij} \cdot \mathbf{p}_i) \mathbf{p}_j}{r_{ij}^3} \phi_j(\mathbf{r}_j) \right. \\
\text{s - o} &\left\{ -\frac{\hbar e^2}{4m^2 c^2} \boldsymbol{\sigma}_i \cdot \left( \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{\mathbf{r}_{ij}}{r_{ij}^3} \phi_j(\mathbf{r}_j) \right) \wedge \mathbf{p}_i + \frac{\hbar e^2}{4m^2 c^2} \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \boldsymbol{\sigma}_j \cdot \left( \frac{\mathbf{r}_{ij}}{r_{ij}^3} \wedge \mathbf{p}_j \right) \phi_j(\mathbf{r}_j) \right. \\
\text{s - a - o} &\left\{ +\frac{2\hbar e^2}{4m^2 c^2} \boldsymbol{\sigma}_i \cdot \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \left( \frac{\mathbf{r}_{ij}}{r_{ij}^3} \wedge \mathbf{p}_j \right) \phi_j(\mathbf{r}_j) + \frac{2\hbar e^2}{4m^2 c^2} \mathbf{p}_i \cdot \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \left( \boldsymbol{\sigma}_j \wedge \frac{\mathbf{r}_{ij}}{r_{ij}^3} \right) \phi_j(\mathbf{r}_j) \right. \\
\text{spin - spin} &\left\{ -\frac{\hbar^2 e^2}{4m^2 c^2} \boldsymbol{\sigma}_i \cdot \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \left( -8\pi \frac{\boldsymbol{\sigma}_j}{3} \delta(r_{ij}) - \frac{\boldsymbol{\sigma}_j}{r_{ij}^3} + 3 \frac{\mathbf{r}_{ij} (\boldsymbol{\sigma}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{r_{ij}^5} \right) \phi_j(\mathbf{r}_j) \right. \quad (3.122)
\end{aligned}$$

### 3.4.4 Comparaison des deux méthodes

Il s'agit maintenant de comparer les éléments des formules (3.105) et (3.122) et proposer une interprétation des termes obtenus. Pour rendre la tâche plus simple il faut d'abord harmoniser les formalismes. Dans la formule (3.122), le vecteur position  $\mathbf{r}_i$  de l'électron  $i$  est équivalent au vecteur position  $\mathbf{x}$  de la formule (3.105) qui est exprimé dans la variable  $r = |\mathbf{x} - \mathbf{x}'|$ . Les vecteurs position  $\mathbf{r}_j$  des autres électrons  $j$  sont équivalents aux vecteurs position  $\mathbf{x}'$ . La transposition se résume de la manière suivante :

$$\sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) f(r_{ij}) \Psi_j(\mathbf{r}_j) \mapsto \int d\mathbf{x}' \Psi^\dagger f(r) \Psi.$$

Ainsi, le hamiltonien (3.122) devient (à l'exception du terme dipolaire de jauge dont on a pas sorti l'opérateur  $\mathbf{p}_i$ ) :

$$\begin{aligned}
(3.122) &= -\frac{\pi \hbar^2 e^2}{m^2 c^2} \int d\mathbf{x}' u^\dagger \delta(r) u - \frac{e^2}{2m^2 c^2} \mathbf{p} \cdot \int d\mathbf{x}' u^\dagger \frac{\mathbf{p}}{r} u \\
&\quad - \frac{e^2}{2m^2 c^2} \int d\mathbf{x}' u^\dagger \frac{\mathbf{r}_{ij} \cdot (\mathbf{r}_{ij} \cdot \mathbf{p}_i) \mathbf{p}_j}{r_{ij}^3} u \\
&\quad + \frac{\hbar e^2}{4m^2 c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \int d\mathbf{x}' u^\dagger \frac{\mathbf{r}}{r^3} u \right) \wedge \mathbf{p} + \frac{2\hbar e^2}{4m^2 c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot \int d\mathbf{x}' u^\dagger \left( \frac{\mathbf{r}}{r^3} \wedge \mathbf{p} \right) u \\
&\quad + \frac{\hbar e^2}{4m^2 c^2} \int d\mathbf{x}' u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \frac{\mathbf{r}}{r^3} \wedge \mathbf{p} \right) u + \frac{2\hbar e^2}{4m^2 c^2} \mathbf{p} \cdot \int d\mathbf{x}' u^\dagger \left( \boldsymbol{\sigma}_j \wedge \frac{\mathbf{r}}{r^3} \right) u \\
&\quad - \frac{\hbar^2 e^2}{4m^2 c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot \int d\mathbf{x}' u^\dagger \left( -8\pi \frac{\boldsymbol{\sigma}}{3} \delta(r) - \frac{\boldsymbol{\sigma}}{r^3} + 3 \frac{\mathbf{r} (\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{r})}{r^5} \right) u. \quad (3.123)
\end{aligned}$$

### Regroupement et comparaison

Il suffit de regrouper les termes d'attributs communs. Par exemple pour les **termes de contact des charges**, il faut comparer :

$$(3.105)_{contact} = \frac{e^2 \hbar^2}{8m^2 c^2} \Delta \left( \int d\mathbf{x}' \frac{u^\dagger u}{r} \right) + \frac{e^2 \hbar^2}{8m^2 c^2} \int d\mathbf{x}' u^\dagger \Delta \frac{1}{r} u$$

$$(3.123)_{contact} = -\frac{\pi \hbar^2 e^2}{m^2 c^2} \int d\mathbf{x}' u^\dagger \delta(r) u.$$

Les opérateurs impliquant l'**interaction non-spin** provenant d'un terme de **Gaunt** sont associés aux termes suivants :

$$(3.105)_{nsG} = -\frac{ie^2 \hbar}{4m^2 c^2} \left( \int d\mathbf{x}' \left( \frac{u \nabla u^\dagger}{r} - \frac{u^\dagger \nabla u}{r} \right) \cdot \mathbf{p} \right)$$

$$(3.123)_{nsG} = -\frac{e^2}{2m^2 c^2} \mathbf{p} \cdot \int d\mathbf{x}' u^\dagger \frac{\mathbf{p}}{r} u.$$

Il faut regarder les opérateurs impliquant l'**interaction non-spin** provenant d'un terme de **jauge** :

$$(3.105)_{nsJ} = -\frac{ie^2 \hbar}{4m^2 c^2} \left( \int d\mathbf{x}' \left( \frac{\mathbf{r}(u \nabla u^\dagger \cdot \mathbf{r})}{r^3} - \frac{\mathbf{r}(u^\dagger \nabla u \cdot \mathbf{r})}{r^3} \right) \cdot \mathbf{p} \right)$$

$$(3.123)_{nsJ} = -\frac{e^2}{2m^2 c^2} \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{\mathbf{r}_{ij} \cdot (\mathbf{r}_{ij} \cdot \mathbf{p}_i) \mathbf{p}_j}{r_{ij}^3} \phi_j(\mathbf{r}_j).$$

Les éléments du **couplage spin-orbite** sont plus faciles à analyser :

$$(3.105)_{soc} = \frac{e^2 \hbar}{4m^2 c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot \nabla \left( \int d\mathbf{x}' \frac{u^\dagger u}{r} \right) \wedge \mathbf{p} - \frac{e^2 \hbar}{4m^2 c^2} \int d\mathbf{x}' u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \mathbf{p} \wedge \nabla \left( \frac{1}{r} \right) \right) u$$

$$= \frac{e^2 \hbar}{4m^2 c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot \nabla \left( \int d\mathbf{x}' \frac{u^\dagger u}{r} \right) \wedge \mathbf{p} + \frac{e^2 \hbar}{4m^2 c^2} \int d\mathbf{x}' u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \frac{\mathbf{r}}{r^3} \wedge \mathbf{p} \right) u$$

$$(3.123)_{soc} = -\frac{\hbar e^2}{4m^2 c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \int d\mathbf{x}' u^\dagger \frac{\mathbf{r}}{r^3} u \right) \wedge \mathbf{p} + \frac{\hbar e^2}{4m^2 c^2} \int d\mathbf{x}' u^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \frac{\mathbf{r}}{r^3} \wedge \mathbf{p} \right) u.$$

En revanche les termes d'interaction **spin-autre-orbite** ne sont pas évidents à comparer :

$$(3.105)_{asoc} = -\frac{e^2 \hbar}{4m^2 c^2} \left( \int d\mathbf{x}' \left( \frac{\nabla \wedge (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u)}{r} \right) \cdot \mathbf{p} + \int d\mathbf{x}' \left( \frac{\mathbf{r}(\nabla \wedge (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u) \cdot \mathbf{r})}{r^3} \right) \cdot \mathbf{p} \right)$$

$$- \frac{ie^2 \hbar^2}{8m^2 c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \nabla \wedge \int d\mathbf{x}' \left( \frac{u \nabla u^\dagger}{r} - \frac{u^\dagger \nabla u}{r} \right) + \nabla \wedge \int d\mathbf{x}' \left( \frac{\mathbf{r}(u \nabla u^\dagger \cdot \mathbf{r})}{r^3} - \frac{\mathbf{r}(u^\dagger \nabla u \cdot \mathbf{r})}{r^3} \right) \right)$$

$$(3.123)_{asoc} = \frac{2\hbar e^2}{4m^2 c^2} \mathbf{p} \cdot \int d\mathbf{x}' u^\dagger \left( \boldsymbol{\sigma} \wedge \frac{\mathbf{r}}{r^3} \right) u + \frac{\hbar e^2}{4m^2 c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot 2 \int d\mathbf{x}' u^\dagger \left( \frac{\mathbf{r}}{r^3} \wedge \mathbf{p} \right) u.$$

Enfin pour les termes d'**interaction spin-spin** :

$$(3.105)_{spin} = -\frac{e^2 \hbar^2}{8m^2 c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \nabla \wedge \int d\mathbf{x}' \left( \frac{\nabla \wedge (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u)}{r} \right) + \nabla \wedge \int d\mathbf{x}' \left( \frac{\mathbf{r}(\nabla \wedge (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u) \cdot \mathbf{r})}{r^3} \right) \right)$$

$$(3.123)_{spin} = -\frac{\hbar^2 e^2}{4m^2 c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot \int d\mathbf{x}' u^\dagger \left( -8\pi \frac{\boldsymbol{\sigma}}{3} \delta(r) - \frac{\boldsymbol{\sigma}}{r^3} + 3 \frac{\mathbf{r}(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{r})}{r^5} \right) u.$$

**Remarques et commentaires**

Nous venons de confronter les termes d'interaction rayonnement-matière obtenus par la méthode auto-cohérente avec ceux obtenus par la méthode de Hartree. Malheureusement, nous ne sommes pas en mesure, à l'heure actuelle, de prouver leur exacte équivalence comme nous l'avons fait dans le cas relativiste. Nous expliquons plus bas, à travers quelques exemples, quels sont les points qui méritent des approfondissements. Cependant, cette étude fournit aussi quelques satisfactions qu'on peut souligner.

- La méthode de champ moyen auto-cohérente permet de retrouver tous les termes d'interaction qui existent au deuxième ordre en  $1/m$  pour un système de particules chargées. Ce constat cohérent n'était pas évident au début de l'étude et nous sommes maintenant capable de dire quels sont les termes d'interaction rayonnement-matière du hamiltonien de Foldy-Wouthuysen au deuxième ordre en  $1/m$  qui contribuent aux interactions de contact, de spin-orbite, de spin autre-orbite et d'interaction spin-spin (voir tableau de la section (3.4.3)).
- Les termes obtenus par les deux méthodes sont similaires vectoriellement, mais aussi à priori, d'un point de vue des coefficients. Les termes d'interaction spin-orbite (3.105)<sub>soc</sub> et (3.123)<sub>soc</sub> sont très parlants.
- D'autres termes présentent des difficultés. Prenons par exemple les termes d'interaction non-spin provenant de l'opérateur de Gaunt (3.105)<sub>nsG</sub> et (3.123)<sub>nsG</sub>. Le deuxième se présente sous la forme  $-(1/2)\mathbf{p} \cdot \int d\mathbf{x}' u^\dagger \frac{\mathbf{p}}{r} u$  avec l'opérateur impulsion  $\mathbf{p}$  sous l'intégrale et un coefficient  $1/2$ . Le deuxième est du type  $(-i\hbar/4) \left( \int d\mathbf{x}' \left( \frac{u \nabla u^\dagger}{r} - \frac{u^\dagger \nabla u}{r} \right) \cdot \mathbf{p} \right)$  avec un coefficient  $1/4$  et deux opérateurs  $\nabla$ , mais n'agissant pas sur les mêmes fonctions d'onde. On voit bien qu'en comptant deux fois l'opérateur  $-i\hbar \nabla$  on pourrait transformer le coefficient en  $1/4$  en  $1/2$  et retrouver un seul opérateur impulsion sous l'intégrale. Le soucis est que la correspondance :

$$-(1/2)\mathbf{p} \cdot \int d\mathbf{x}' u^\dagger \frac{\mathbf{p}}{r} u \quad \longleftrightarrow \quad (-i\hbar/4) \left( \int d\mathbf{x}' \left( \frac{u \nabla u^\dagger}{r} - \frac{u^\dagger \nabla u}{r} \right) \cdot \mathbf{p} \right),$$

n'est pas facile à établir. Il faudrait pouvoir prouver :

$$\int d\mathbf{x}' \frac{u \nabla u^\dagger}{r} = - \int d\mathbf{x}' \frac{u^\dagger \nabla u}{r}.$$

Le soucis est que l'opérateur présent dans le produit scalaire est  $\frac{\nabla}{r}$ . En mécanique quantique  $\nabla$  et  $\frac{1}{r}$  ne commutent pas et il est difficile de savoir si l'opérateur  $\nabla$  agit sur  $u$  ou sur  $\frac{u}{r}$ .

- Par ailleurs, cette expression provient initialement de la **forme classique du courant transverse  $\mathbf{j}_T$**  dans la jauge de Coulomb et dans l'approximation quasistatique :

$$\mathbf{j}_T(\mathbf{x}, t) = \frac{1}{4\pi} \nabla \times \nabla \times \int \frac{d\mathbf{x}'}{r} \mathbf{j}(\mathbf{x}', t) = \frac{\mathbf{j}(\mathbf{x}, t)}{2r} + \frac{\mathbf{r}(\mathbf{r} \cdot \mathbf{j}(\mathbf{x}, t))}{2r^3}.$$

Il serait peut-être nécessaire de **symétriser les opérateurs  $\mathbf{j}$**  et  $\frac{1}{r}$  pour travailler avec les règles de la mécanique quantique.

- Les deux remarques précédentes concernent aussi les autres opérateurs. Les coefficients semblent être identiques mais il faut **définir des règles de calcul** et vérifier que les termes des deux approches sont bien identiques.

### 3.5 Prise en compte d'un champ externe dépendant du temps

« Sur7soverivercuserin »

Mot de passe pour aller de la  
vallée de la Bruche au Portillon.

Jusqu'à présent nous avons étudié la contribution des champs internes au système, c'est-à-dire ceux produits par les particules. On cherche maintenant à ajouter un champ externe dépendant du temps aux modèles de champ moyen développés. On réalise ce travail dans la section (3.5.1) pour le cas relativiste et dans la section (3.5.2) pour le cas quantique non-relativiste au second ordre en  $1/m$ . La section (3.5.3) est consacrée à la conclusion du chapitre.

#### 3.5.1 Formalisme quantique relativiste

##### Théorie auto-cohérente

On souhaite ajouter la présence d'un champ externe représenté par le couple  $(\Phi_{ext}(\mathbf{x}, t), \mathbf{A}_{ext}(\mathbf{x}, t))$  au système de  $N$  électrons en interaction de charges  $q_1 = q_2 = \dots = q_N = q$  dans la théorie auto-cohérente développée dans la section (3.3.1). Cette opération ne présente pas de difficulté particulière, il suffit d'ajouter  $\Phi_{ext}(\mathbf{x}, t)$  à  $\Phi_{int}(\mathbf{x}, t)$  et  $\mathbf{A}_{ext}(\mathbf{x}, t)$  à  $\mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t)$  dans les termes de l'équation (3.73). On obtient les équations suivantes :

$$\begin{aligned}
 * \quad & (c\boldsymbol{\alpha} \cdot (\mathbf{p} - q\mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t) - q\mathbf{A}_{ext}(\mathbf{x}, t)) \\
 & + mc^2\beta + q\Phi_{int}(\mathbf{x}, t) + q\Phi_{ext}(\mathbf{x}, t)) \Psi(\mathbf{x}, t) = i\hbar \frac{\partial \Psi(\mathbf{x}, t)}{\partial t} \\
 * \quad & \Delta \Phi_{int}(\mathbf{x}, t) = -\frac{\rho(\mathbf{x}, t)}{\epsilon_0} \\
 * \quad & \Delta \mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t) = -\mu_0 \mathbf{j}_T(\mathbf{x}, t).
 \end{aligned}$$

Les autres équations ne sont pas modifiées.

##### Théorie de Hartree

Dans la méthode variationnelle de Hartree, si on rajoute un champ externe dépendant du temps, le hamiltonien exact du problème pour la fonction d'onde totale décrite dans l'approximation d'Hartree  $\Psi = \Psi(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_N) = \Psi_1(\mathbf{r}_1)\Psi_2(\mathbf{r}_2)\dots\Psi_N(\mathbf{r}_N)$  s'écrit selon l'équation suivante :

$$H = \sum_{i=1}^N (c\boldsymbol{\alpha}_i \cdot (\mathbf{p}_i - q\mathbf{A}_{ext}(\mathbf{x}, t)) + q\Phi_{ext}(\mathbf{x}, t)mc^2\beta_i) + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} U_{ij} + B_{ij}, \quad (3.124)$$

avec  $U_{ij} = K_{ij} + B_{ij}$  l'opérateur d'énergie potentielle entre deux particules  $i$  et  $j$  composé de l'opérateur coulombien et de l'opérateur de Breit. Si on calcule l'énergie moyenne et que l'on minimise cette grandeur par rapport à  $\Psi$  et  $\Psi^\dagger$ , il suffit réaliser la procédure pour les termes d'interaction rayonnement-matière impliquant le champ externe. Les autres termes on déjà été calculés dans la section (3.3.3). On cherche à obtenir une équation du type :

$$\delta \left\langle \sum_{i=1}^N H_i(\Phi_{ext}, \mathbf{A}_{ext}, \Psi_i^\dagger, \Psi_i) \right\rangle = \sum_{i=1}^N \delta \Psi_i^\dagger \left( \hat{h}(\Phi_{ext}, \mathbf{A}_{ext}) \Psi_i \right) + \delta(\Psi_i^\dagger)^* \left( \hat{h}^*(\Phi_{ext}, \mathbf{A}_{ext}) \Psi_i^* \right) = 0. \quad (3.125)$$

On obtient alors :

$$\begin{aligned}
\delta \langle H(\Phi_{ext}, \mathbf{A}_{ext}) \rangle &= \delta \left( \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_1 \Psi_1^\dagger \dots \int d\mathbf{r}_N \Psi_N^\dagger (-qc\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \mathbf{A}_{ext} + q\Phi_{ext}) \Psi_1 \dots \Psi_N \right) \\
&= (1)^{N-1} \delta \left( \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i \Psi_i^\dagger (-qc\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \mathbf{A}_{ext} + q\Phi_{ext}) \Psi_i \right) \\
&= \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i \delta\Psi_i^\dagger (-qc\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \mathbf{A}_{ext} + q\Phi_{ext}) \Psi_i + \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i \Psi_i^\dagger (-qc\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \mathbf{A}_{ext} + q\Phi_{ext}) \delta\Psi_i
\end{aligned} \tag{3.126}$$

$$= \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i \delta\Psi_i^\dagger [-qc\boldsymbol{\alpha}_i \cdot \mathbf{A}_{ext} \Psi_i + q\Phi_{ext}] \Psi_i + \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i (\delta\Psi_i^\dagger)^* [-qc\boldsymbol{\alpha}_i^* \cdot \mathbf{A}_{ext} + q\Phi_{ext}] \Psi_i^*. \tag{3.127}$$

où l'on utilise les mêmes propriétés  $\langle \Psi_i | \boldsymbol{\alpha} | \delta\Psi_i \rangle = (\langle \delta\Psi_i | \boldsymbol{\alpha} | \Psi_i \rangle)^*$  que dans la section (3.3.3) pour passer de (3.126) à (3.127), ce qui correspond bien à la forme (3.125). On obtient alors  $N$  équations monoélectroniques pour les fonctions d'onde  $\Psi_i(\mathbf{r}_i)$  que l'on peut ajouter à l'expression (3.87) et dénommer **équations de Hartree-Breit en présence d'un champ externe** :

$$\begin{aligned}
&\left( c\boldsymbol{\alpha}_i \cdot (\mathbf{p}_i - q\mathbf{A}_{ext}) + mc^2\beta_i + q\Phi_{ext} + \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \frac{e^2 \Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \Psi_j(\mathbf{r}_j)}{r_{ij}} \right. \\
&\quad \left. - e^2 \boldsymbol{\alpha}_i \cdot \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \left( \frac{\Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \boldsymbol{\alpha}_j \Psi_j(\mathbf{r}_j)}{2r_{ij}} + \frac{\mathbf{r}_{ij} (\Psi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \boldsymbol{\alpha}_j \Psi_j(\mathbf{r}_j) \cdot \mathbf{r}_{ij})}{2r_{ij}^3} \right) \right) \Psi_i(\mathbf{r}_i) = \epsilon_i \Psi_i(\mathbf{r}_i).
\end{aligned} \tag{3.128}$$

### 3.5.2 Formalisme à deux composantes

#### Théorie auto-cohérente

On réalise la même opération que précédemment en ajoutant le couple  $(\Phi_{ext}(\mathbf{x}, t), \mathbf{A}_{ext}(\mathbf{x}, t))$  dans le hamiltonien de Foldy-Wouthuysen au second ordre en  $1/m$ . Les équations auto-cohérentes sont modifiées selon :

$$\begin{aligned}
* &\left( \frac{1}{2m} (\mathbf{p} - q(\mathbf{A}_{int} + \mathbf{A}_{ext}))^2 - \frac{q\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \wedge (\mathbf{A}_{int} + \mathbf{A}_{ext})) + q\Phi_{int} + q\Phi_{ext} - \frac{q\hbar^2}{8m^2 c^2} \nabla \cdot (\mathbf{E}_{int} + \mathbf{E}_{ext}) \right. \\
&\quad \left. - \frac{q\hbar}{8m^2 c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot ((\mathbf{E}_{int} + \mathbf{E}_{ext}) \wedge (\mathbf{p} - q(\mathbf{A}_{int} + \mathbf{A}_{ext})) - (\mathbf{p} - q(\mathbf{A}_{int} + \mathbf{A}_{ext})) \wedge (\mathbf{E}_{int} + \mathbf{E}_{ext})) \right) u = i\hbar \frac{\partial u}{\partial t} \\
* &\Delta\Phi_{int}(\mathbf{x}, t) = -\frac{\rho(\mathbf{x}, t)}{\epsilon_0} \\
* &\Delta\mathbf{A}_{int}(\mathbf{x}, t) = -\mu_0 \mathbf{j}_T(\mathbf{x}, t).
\end{aligned}$$

Dans la perspective d'un calcul numérique, on doit tenir compte de l'ajout du champ externe dans l'expression des sources, ce qui donne :

$$\begin{aligned}\rho_i^{(0)} &= u_i^\dagger u \\ \rho_i^{(2)} &= u_i^\dagger u_i \frac{\hbar^2}{8m^2 c^2} \Delta - \frac{\hbar}{4m^2 c^2} u_i^\dagger \boldsymbol{\sigma} \cdot ((\mathbf{p} - q(\mathbf{A}_{int} + \mathbf{A}_{ext})) u_i \wedge \nabla) \\ \mathbf{j}_i^{(1)} &= \frac{i\hbar}{2m} (u_i \nabla u_i^\dagger - u_i^\dagger \nabla u_i) - \frac{q}{2m} u_i^\dagger u_i (\mathbf{A}_{int} + \mathbf{A}_{ext}) + \frac{\hbar}{2m} \nabla \wedge (u_i^\dagger \boldsymbol{\sigma} u_i) \\ \mathbf{j}_i^{(2)} &= -\frac{q\hbar}{4m^2 c^2} (u_i^\dagger \boldsymbol{\sigma} u_i \wedge (\mathbf{E}_{int} + \mathbf{E}_{ext})).\end{aligned}$$

Cette opération amène des modifications concernant le hamiltonien d'interaction rayonnement-matière du second ordre en  $1/m$ . Elles sont apportées par le deuxième terme de  $\rho^{(2)}$ , le deuxième terme de  $\mathbf{j}_i^{(1)}$  qui comportent le terme supplémentaire  $\mathbf{A}_{ext}$  ainsi que par le terme d'interaction spin-orbite du hamiltonien de FW contenant  $\mathbf{A}_{ext}$ . La conséquence est qu'il existe des termes de champ moyen supplémentaires fonctions de  $\mathbf{A}_{ext}$ , qui s'ajoutent aux termes non spin de Gaunt (3.105)<sub>nsG</sub> et de jauge (3.105)<sub>nsJ</sub>, aux termes d'interaction spin-autre-orbite (3.105)<sub>asoc</sub> ainsi qu'aux termes d'interaction spin-orbite (3.105)<sub>soc</sub>. **Ce résultat est tout à fait naturel.** Il est à mettre en lien avec la modification du hamiltonien de Breit-Pauli au second ordre en  $1/m$  en présence d'un champ externe dépendant du temps, où nous avons montré dans la section (2.3.5) du deuxième chapitre qu'il fallait remplacer  $\mathbf{p}$  par  $\mathbf{p} - q\mathbf{A}$ . On retrouve un résultat similaire dans la théorie de champ moyen où la densité quantique de courant orbital doit être complétée par le terme contenant le potentiel vecteur.

### Théorie de Hartree

Dans la section (3.4.3) nous avons travaillé avec le hamiltonien suivant :

$$H = \sum_{i=1}^N T_i + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} K_{ij} + \frac{1}{2} \sum_{k=1}^{10} \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} H_{ij}^{BP(k)},$$

avec  $T_i = \frac{\mathbf{p}_i^2}{2m}$ . En présence d'un champ externe on utilise l'ensemble du hamiltonien de FW au deuxième ordre et le hamiltonien exact du problème devient :

$$H = \sum_{i=1}^N \left( \frac{\mathbf{p}_i^2}{2m} + H_i^{FW(2)}(\mathbf{A}_{ext}, \Phi_{ext}) \right) + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} U_{ij}$$

avec  $U_{ij} = K_{ij} + \sum_{k=1}^{10} H_{ij}^{BP(k)}$  qui représente l'interaction coulombienne au deuxième ordre en  $1/m$  donné par l'opérateur de Coulomb et le hamiltonien de Breit-Pauli (*on néglige pour l'instant la modification du hamiltonien de Breit-Pauli par le champ externe*). La quantité  $H_i^{FW(2)}(\mathbf{A}_{ext}, \Phi_{ext})$ , représentant l'interaction rayonnement-matière avec le champ externe dans la jauge de Coulomb vaut :

$$\begin{aligned}H_i^{FW(2)}(\mathbf{A}_{ext}, \Phi_{ext}) &= -\frac{q}{m} \mathbf{A}_{ext} \cdot \mathbf{p}_i + \frac{q^2}{2m} \mathbf{A}_{ext}^2 - \frac{q\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma}_i \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}_{ext}) + q\Phi_{ext} \\ &+ \frac{q\hbar^2}{8m^2 c^2} \Delta \Phi_{ext} - \frac{q\hbar}{8m^2 c^2} \boldsymbol{\sigma}_i \cdot (\mathbf{E}_{ext} \wedge (\mathbf{p}_i - q\mathbf{A}_{ext}) - (\mathbf{p}_i - q\mathbf{A}_{ext}) \wedge \mathbf{E}_{ext}).\end{aligned}\tag{3.129}$$

Pour achever la théorie de champ moyen selon la méthode de Hartree, il faut appliquer le principe variationnel sur l'énergie moyenne de l'équation (3.129) et obtenir une équation du type :

$$\delta \left\langle \sum_{i=1}^N H_i^{FW(2)}(\Phi_{ext}, \mathbf{A}_{ext}, \phi_i^\dagger, \phi_i) \right\rangle = \sum_{i=1}^N \delta \phi_i^\dagger \left( \hat{h}^{FW(2)}(\Phi_{ext}, \mathbf{A}_{ext}) \phi_i \right) + \delta(\phi_i^\dagger)^* \left( \hat{h}^{FW(2)*}(\Phi_{ext}, \mathbf{A}_{ext}) \phi_i^* \right) = 0.\tag{3.130}$$

On peut écrire directement :

$$\begin{aligned}
\delta \langle H_i^{FW(2)}(\Phi_{ext}, \mathbf{A}_{ext}) \rangle &= \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i \delta\phi_i^\dagger \left( -\frac{q}{m} \mathbf{A}_{ext} \cdot \mathbf{p}_i + \frac{q^2}{2m} \mathbf{A}_{ext}^2 - \frac{q\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma}_i \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}_{ext}) + q\Phi_{ext} \right. \\
&\quad \left. + \frac{q\hbar^2}{8m^2c^2} \Delta\Phi_{ext} - \frac{q\hbar}{8m^2c^2} \boldsymbol{\sigma}_i \cdot (\mathbf{E}_{ext} \wedge (\mathbf{p}_i - q\mathbf{A}_{ext}) - (\mathbf{p}_i - q\mathbf{A}_{ext}) \wedge \mathbf{E}_{ext}) \right) \phi_i \\
&\quad + \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i \phi_i^\dagger \left( -\frac{q}{m} \mathbf{A}_{ext} \cdot \mathbf{p}_i + \frac{q^2}{2m} \mathbf{A}_{ext}^2 - \frac{q\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma}_i \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}_{ext}) + q\Phi_{ext} \right. \\
&\quad \left. + \frac{q\hbar^2}{8m^2c^2} \Delta\Phi_{ext} - \frac{q\hbar}{8m^2c^2} \boldsymbol{\sigma}_i \cdot (\mathbf{E}_{ext} \wedge (\mathbf{p}_i - q\mathbf{A}_{ext}) - (\mathbf{p}_i - q\mathbf{A}_{ext}) \wedge \mathbf{E}_{ext}) \right) \delta\phi_i.
\end{aligned} \tag{3.131}$$

Pour obtenir une forme similaire à (3.130) on transforme (3.131) à l'aide des propriétés de la section (3.4.3),  $\langle \phi_i | \mathbf{p} | \delta\phi_i \rangle = (\langle \delta\phi_i | \mathbf{p} | \phi_i \rangle)^*$  et  $\langle \phi_i | \boldsymbol{\sigma} | \delta\phi_i \rangle = (\langle \delta\phi_i | \boldsymbol{\sigma} | \phi_i \rangle)^*$  ainsi que  $\langle \phi_i | \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p} | \delta\phi_i \rangle = (\langle \delta\phi_i | \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p} | \phi_i \rangle)^*$ , on obtient bien :

$$\begin{aligned}
\delta \langle H_i^{FW(2)}(\Phi_{ext}, \mathbf{A}_{ext}) \rangle &= \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i \delta\phi_i^\dagger \left( -\frac{q}{m} \mathbf{A}_{ext} \cdot \mathbf{p}_i + \frac{q^2}{2m} \mathbf{A}_{ext}^2 - \frac{q\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma}_i \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}_{ext}) + q\Phi_{ext} \right. \\
&\quad \left. + \frac{q\hbar^2}{8m^2c^2} \Delta\Phi_{ext} - \frac{q\hbar}{8m^2c^2} \boldsymbol{\sigma}_i \cdot (\mathbf{E}_{ext} \wedge (\mathbf{p}_i - q\mathbf{A}_{ext}) - (\mathbf{p}_i - q\mathbf{A}_{ext}) \wedge \mathbf{E}_{ext}) \right) \phi_i \\
&\quad + \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i (\delta\phi_i^\dagger)^* \left( -\frac{q}{m} \mathbf{A}_{ext} \cdot \mathbf{p}_i^* + \frac{q^2}{2m} \mathbf{A}_{ext}^2 - \frac{q\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma}_i^* \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}_{ext}) + q\Phi_{ext} \right. \\
&\quad \left. + \frac{q\hbar^2}{8m^2c^2} \Delta\Phi_{ext} - \frac{q\hbar}{8m^2c^2} \boldsymbol{\sigma}_i^* \cdot (\mathbf{E}_{ext} \wedge (\mathbf{p}_i^* - q\mathbf{A}_{ext}) - (\mathbf{p}_i^* - q\mathbf{A}_{ext}) \wedge \mathbf{E}_{ext}) \right) \phi_i^*.
\end{aligned}$$

Cette opération nous permet d'obtenir  $N$  équations monoélectroniques indépendantes tenant compte de la présence du champ externe. Cependant pour être rigoureux, il faudrait reprendre les calculs de la section (3.4.3) en dérivant le hamiltonien de Breit-Pauli modifié par la présence de l'impulsion généralisée  $\mathbf{p} - q\mathbf{A}_{ext}$ . Etant donné que  $\mathbf{A}_{ext}$  ne dépend ni de  $i$ , ni de  $j$ , on imagine bien que le calcul serait fastidieux et qu'il suffit de réaliser la substitution directement dans l'équation (3.122). On écrit alors les **équations de Hartree-Breit-Pauli en présence d'un champ externe** :

$$\begin{aligned}
&\left( \frac{(\mathbf{p}_i - q\mathbf{A}_{ext})^2}{2m} - \frac{q\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma}_i \cdot (\nabla \wedge \mathbf{A}_{ext}) + q\Phi_{ext} + \frac{q\hbar^2}{8m^2c^2} \Delta\Phi_{ext} \right. \\
&\quad - \frac{q\hbar}{8m^2c^2} \boldsymbol{\sigma}_i \cdot (\mathbf{E}_{ext} \wedge (\mathbf{p}_i - q\mathbf{A}_{ext}) - (\mathbf{p}_i - q\mathbf{A}_{ext}) \wedge \mathbf{E}_{ext}) + e^2 \sum_{i \neq j} \left( \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger \frac{1}{r_{ij}} \phi_j - \frac{\pi\hbar^2 e^2}{m^2 c^2} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger \delta(r_{ij}) \phi_j \right. \\
&\quad - \frac{e^2}{2m^2 c^2} (\mathbf{p}_i - q\mathbf{A}_{ext}) \cdot \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger \frac{(\mathbf{p}_j - q\mathbf{A}_{ext})}{r_{ij}} \phi_j - \frac{e^2}{2m^2 c^2} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger (\mathbf{r}_j) \frac{\mathbf{r}_{ij} \cdot (\mathbf{r}_{ij} \cdot (\mathbf{p}_i - q\mathbf{A}_{ext})) (\mathbf{p}_j - q\mathbf{A}_{ext})}{r_{ij}^3} \phi_j \\
&\quad + \frac{\hbar e^2}{4m^2 c^2} \boldsymbol{\sigma}_i \cdot \left( \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger \frac{\mathbf{r}_{ij}}{r_{ij}^3} \phi_j \right) \wedge (\mathbf{p}_i - q\mathbf{A}_{ext}) + \frac{\hbar e^2}{4m^2 c^2} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger \boldsymbol{\sigma}_j \cdot \left( \frac{\mathbf{r}_{ij}}{r_{ij}^3} \wedge (\mathbf{p}_j - q\mathbf{A}_{ext}) \right) \phi_j \\
&\quad + \frac{2\hbar e^2}{4m^2 c^2} \boldsymbol{\sigma}_i \cdot \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger \left( \frac{\mathbf{r}_{ij}}{r_{ij}^3} \wedge (\mathbf{p}_j - q\mathbf{A}_{ext}) \right) \phi_j + \frac{2\hbar e^2}{4m^2 c^2} (\mathbf{p}_i - q\mathbf{A}_{ext}) \cdot \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger \left( \boldsymbol{\sigma}_j \wedge \frac{\mathbf{r}_{ij}}{r_{ij}^3} \right) \phi_j \\
&\quad \left. - \frac{\hbar^2 e^2}{4m^2 c^2} \boldsymbol{\sigma}_i \cdot \int d\mathbf{r}_j \phi_j^\dagger \left( -8\pi \frac{\boldsymbol{\sigma}_j}{3} \delta(r_{ij}) - \frac{\boldsymbol{\sigma}_j}{r_{ij}^3} + 3 \frac{\mathbf{r}_{ij} (\boldsymbol{\sigma}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{r_{ij}^5} \right) \phi_j \right) \phi_i = \epsilon_i \phi_i.
\end{aligned} \tag{3.132}$$



# Chapitre 4

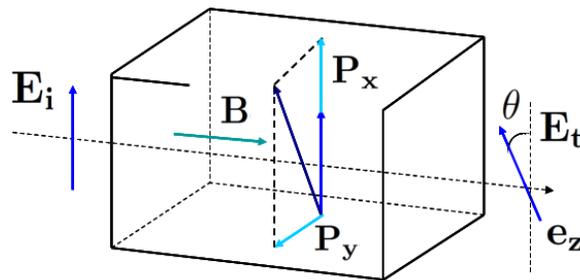
## Eléments de magnéto-optique

Dans ce chapitre on présente les effets Kerr et Faraday qui sont les phénomènes magnéto-optiques sur lesquels repose l'étude expérimentale de la désaimantation ultra-rapide induite par des impulsions laser ultra-brèves et intenses. En premier lieu, on aborde dans la section (4.1) le sujet dans le cadre de l'optique linéaire en montrant que les grandeurs expérimentales étudiées constituent une mesure du caractère anisotrope de l'échantillon. Dans la section (4.2), on décrit le phénomène d'un point de vue microscopique en accordant une attention particulière aux corps ferromagnétiques. On montre que l'aimantation du système représente l'aspect prépondérant du caractère anisotrope. La mesure expérimentale des paramètres magnéto-optiques permet ainsi une mesure indirecte de l'aimantation statique d'un matériau. On présente dans la section (4.3.2) les techniques expérimentales résolues en temps qui permettent d'étudier la dynamique d'aimantation ultra-rapide observée dans les régimes d'optique non-linéaire. La dernière partie (section (4.3.4)) est consacrée à la magnéto-optique cohérente qui constitue une branche nouvelle du femtomagnétisme. On y expliquera le lien avec la dynamique relativiste étudiée dans les chapitres précédents.

### 4.1 Effets Kerr et Faraday

#### 4.1.1 Présentation

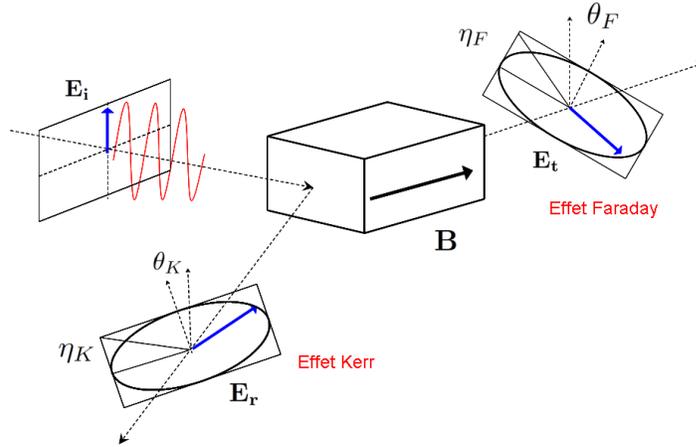
Découvert par Michael Faraday en 1845, l'**effet Faraday** est le phénomène de **rotation du plan de polarisation de la lumière**, observé lors de sa propagation dans un matériau soumis à un champ magnétique.



L'angle de rotation  $\theta$  est proportionnel à la distance  $l$  parcouru dans le matériau et à l'amplitude du champ magnétique  $B$  appliqué :

$$\theta = V(\omega).B.l, \quad (4.1)$$

où  $V(\omega)$  est la constante de Verdet, elle contient la fonction de réponse du matériau. Cet effet s'explique par **l'anisotropie du matériau provoquée par le champ magnétique**. Si le milieu est isotrope, la polarisation des charges est colinéaire avec le champ électrique incident. A la sortie de l'échantillon, le plan de polarisation de la lumière n'est pas modifié. En revanche, la présence d'un champ magnétique génère une polarisation des charges supplémentaire, perpendiculaire au champ électrique incident, qui modifie la direction du champ électrique à l'intérieur du matériau. Le plan de polarisation de la lumière transmise, défini par le plan formé par la direction du champ électrique et la direction de propagation, a tourné d'un angle  $\theta$  par rapport à celui de l'onde incidente. Dans les gammes de pulsation où le milieu est absorbant, la vibration transmise est polarisée elliptiquement. La modification de l'état de polarisation existe aussi pour la lumière réfléchie, on parle alors d'**effet Kerr magnéto-optique** (1877). Ainsi, de façon plus générale, l'interaction d'une onde électromagnétique polarisée rectilignement avec un matériau soumis à un champ magnétique, génère une onde réfléchie et une onde transmise polarisées elliptiquement. Les angles de rotation et d'ellipticité de la vibration transmise sont notés  $\theta_F$  et  $\eta_F$ , ceux de la vibration réfléchie  $\theta_K$  et  $\eta_K$ .



Les grandeurs magnéto-optiques de rotation et d'ellipticité peuvent être étudiées à l'aide de la phase des signaux après interaction avec le matériau. Que ce soit pour l'effet Faraday ou l'effet Kerr, on peut montrer que pour des faibles angles (section (4.1.4)) la phase  $\phi$  des signaux s'écrit :

$$\phi = \theta + i\eta.$$

La phase  $\phi$  et la rotation du plan de polarisation sont dues à la **biréfringence du matériau** provoquée par le champ magnétique. Le tenseur diélectrique comporte des termes non diagonaux :

$$[\epsilon] = \begin{bmatrix} \epsilon_{xx} & \epsilon_{xy} & 0 \\ -\epsilon_{xy} & \epsilon_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{zz} \end{bmatrix}.$$

L'indice du milieu n'est pas le même selon la direction de propagation. Il apparaît un **déphasage** entre les composantes du champ électrique. La nature vectorielle du champ électrique permet de décomposer une vibration rectiligne en la somme d'une polarisation circulaire droite (mode (+)) et d'une polarisation circulaire gauche (mode (-)). A ces états de polarisation particuliers sont associés les **indices optiques circulaires**, obtenus à partir des équations de Maxwell (section 4.1.3) et définis selon :

$$n_{\pm}^2 = \epsilon_{xx} \pm i\epsilon_{xy}.$$

Ils représentent les valeurs propres du tenseur  $[\epsilon]$  dans la base des états circulaires. C'est la différence de chemin optique  $\Delta L$ , parcouru par les modes circulaires, qui provoque la modification du plan de polarisation. Si le milieu est absorbant les modes (+) et (-) sont atténués de manières différentes et ne permettent pas la reconstitution d'une polarisation rectiligne après interaction avec le matériau : la vibration est polarisée elliptiquement. La différence de marche se précise par la différence des indices associés aux modes (+) et (-) ( $\Delta L \approx \Delta n = n_+ - n_-$ ). La phase des signaux contient cette différence d'indices :

$$\phi = \theta + i\eta = f(\Delta n, \omega).$$

### Intérêts

L'effet Faraday est observé dans de nombreux matériaux présentant un pouvoir rotatoire. Les matériaux d'intérêts ici sont les matériaux aimantés et plus précisément les ferromagnétiques. L'équation (4.1) présente une proportionnalité entre la rotation  $\theta$  et le champ magnétique appliqué  $B$ . Or dans les milieux matériels aimantés le champ d'induction contient les effets du champ d'excitation magnétique  $\mathbf{H}$  et de l'aimantation macroscopique  $\mathbf{M}$ .

$$\mathbf{B} = \mu_0(\mathbf{H} + \mathbf{M}).$$

La relation entre champ magnétique et l'aimantation permet d'obtenir une mesure de l'aimantation du matériau par la mesure de  $\theta$ . Ces effets magnéto-optiques sont à l'origine des phénomènes de désaimantation ultra-rapide, observés dans des régimes d'optique non-linéaire, dont nous discuterons plus tard. On cherche tout d'abord dans la section (4.1) à déterminer plus précisément les expressions des grandeurs magnéto-optiques dans le cadre de l'optique linéaire, la rotation  $\theta$  et l'ellipticité  $\eta$  étant les grandeurs mesurées expérimentalement. Ainsi,

- On rappelle tout d'abord les propriétés géométriques de la polarisation de la lumière pour comprendre le lien entre les différents angles  $\phi$ ,  $\theta$  et  $\eta$  puis on présente les bases du formalisme de Jones qui permet de décrire les différents états de polarisation.
- On présente ensuite comment obtenir les indices circulaires à partir des équations de Maxwell.
- On précise après quelles sont les expressions des phases Kerr  $\phi_K$  et Faraday  $\phi_F$  et on montre l'importance de la nature anisotrope du matériau dans la modification de la phase des signaux.

La proportionnalité avec le champ magnétique ou l'aimantation est étudiée plus tard en section (4.2) dans la compréhension du phénomène d'un point de vue microscopique.

#### 4.1.2 Polarisation de la lumière

Soit une onde plane se propageant dans la direction  $Oz$  que l'on développe sous la forme :

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(z, t) &= (E_{0x}e^{i\phi_x}\mathbf{e}_x + E_{0y}e^{i\phi_y}\mathbf{e}_y)e^{i(kz-\omega t)} \\ &= (E_{0x}\mathbf{e}_xe^{-i\omega t} + E_{0y}\mathbf{e}_ye^{i(\phi-\omega t)})e^{i(kz+\phi_x)}, \end{aligned}$$

où l'on note  $\phi = \phi_y - \phi_x$  le déphasage entre les composantes du champ électrique. Dans le plan ( $Oxy$ ) ( $z = 0$ ), les composantes réelles du champ électrique sont :

$$\mathbf{E} = E_{0x}\cos(\omega t)\mathbf{e}_x + E_{0y}\cos(\omega t - \phi)\mathbf{e}_y.$$

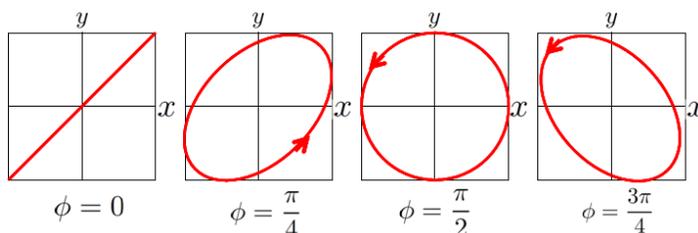
Le plan de polarisation de la lumière est le plan formé par le vecteur d'onde  $\mathbf{k} = k\mathbf{e}_z$  et le vecteur  $\mathbf{E}$ . Dans le repère du laboratoire ( $Oxy$ ), l'extrémité du vecteur champ électrique décrit une trajectoire

elliptique. Les composantes du champ  $E_x = E_{0x}\cos(\omega t)$  et  $E_y = E_{0y}\cos(\omega t - \phi)$  sont reliées par l'équation caractéristique d'une ellipse :

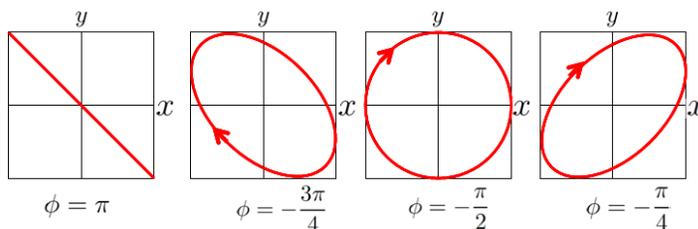
$$\left(\frac{E_y}{E_{0y}}\right)^2 + \left(\frac{E_x}{E_{0x}}\right)^2 - \frac{2E_y E_x}{E_{0y} E_{0x}} \cos(\phi) = \sin^2(\phi). \quad (4.2)$$

La valeur de la phase  $\phi$  détermine la nature de l'ellipse :

- pour  $\phi$  compris entre 0 et  $\pi$ , le sens de rotation est dit gauche (sens anti-horaire). La polarisation est rectiligne lorsque  $\phi = 0$  et circulaire gauche lorsque  $\phi = \frac{\pi}{2}$  :



- pour  $\phi$  compris entre  $-\pi$  et 0, le sens de rotation est dit droit (sens horaire). La polarisation est rectiligne lorsque  $\phi = -\pi$  et circulaire droite lorsque  $\phi = -\frac{\pi}{2}$  :



Il est commode de se placer dans le repère propre de l'ellipse ( $Ox'y'$ ) obtenu par une rotation d'angle  $\theta$  autour de l'axe  $z$  (voir figure 4.1) :

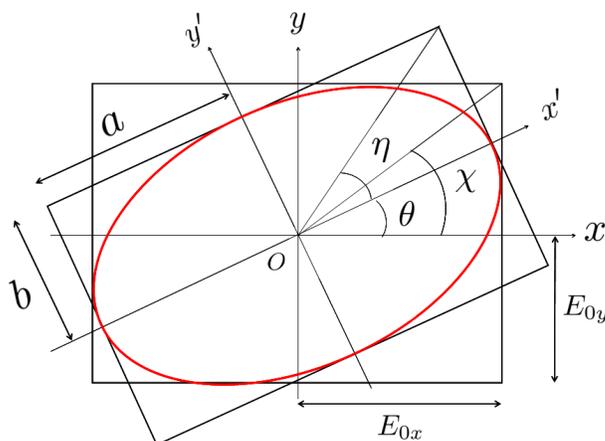


FIG. 4.1 – Ellipse représentée dans les bases ( $Oxy$ ) et ( $Ox'y'$ ) .

Dans la base  $(Ox'y')$  les composantes du champ électrique  $\mathbf{E} = (E_{x'}, E_{y'})$  sont liées à celle du repère du laboratoire par la matrice de rotation  $R(\theta)$  :

$$\begin{bmatrix} E_{x'} \\ E_{y'} \end{bmatrix} = R(\theta) \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \cos(\theta) & \sin(\theta) \\ -\sin(\theta) & \cos(\theta) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} E_x \cos(\theta) + E_y \sin(\theta) \\ E_y \cos(\theta) - E_x \sin(\theta) \end{bmatrix}. \quad (4.3)$$

L'angle  $\theta$  caractérise l'orientation par rapport au repère du laboratoire, de manière à inscrire l'ellipse dans un rectangle de côté  $a$  et  $b$  coïncidant respectivement au grand axe et au petit axe. Dans ce repère, l'ellipticité est définie par l'angle  $\eta$  tel que  $\tan \eta = \frac{b}{a}$  et l'équation caractéristique de l'ellipse s'écrit :

$$\left(\frac{E_{x'}}{a}\right)^2 + \left(\frac{E_{y'}}{b}\right)^2 = 1. \quad (4.4)$$

En remplaçant les équations (4.3) dans (4.4) et en identifiant membre à membre les expressions obtenues avec celles de l'équation (4.2) on peut obtenir les relations liant entre elles les grandeurs  $E_{0x}$ ,  $E_{0y}$ ,  $a$ ,  $b$ ,  $\theta$ ,  $\eta$ ,  $\chi$ , l'intensité  $I = E_{0x}^2 + E_{0y}^2$  et la phase  $\phi$  :

$$\begin{aligned} \cos(2\theta) &= \frac{E_{0x}^2 - E_{0y}^2}{\sqrt{I^2 - 4E_{0x}^2 E_{0y}^2 \sin^2(\phi)}} & \sin(2\theta) &= \frac{2E_{0x} E_{0y} \cos(\phi)}{\sqrt{I^2 - 4E_{0x}^2 E_{0y}^2 \sin^2(\phi)}} \\ \cos(2\eta) &= \frac{1}{I} \sqrt{I^2 - 4E_{0x}^2 E_{0y}^2 \sin^2(\phi)} & \sin(2\eta) &= \frac{2E_{0x} E_{0y}}{I} \sin(\phi). \end{aligned}$$

Elles permettent d'aboutir aux relations suivantes :

$$\begin{aligned} \sin(2\eta) &= \sin(2\chi) \sin(\phi) \\ \tan(2\eta) &= \sin(2\theta) \tan(\phi), \end{aligned}$$

qui nous seront utiles dans la section (4.3.2) pour prouver que les mesures expérimentales représentent bien les paramètres magnéto-optiques. Ces expressions sont toutes démontrées dans l'annexe *Polarisation de la lumière*.

### Formalisme de Jones

Le formalisme de Jones décrit l'état de polarisation de la lumière par un **vecteur colonne à deux lignes**, proportionnelles aux amplitudes des deux champs perpendiculaires  $E_x \mathbf{e}_x$  et  $E_y \mathbf{e}_y$  [54]. En notant le déphasage  $\phi = \phi_y - \phi_x$  le champ électrique s'écrit :

$$\mathbf{E} = \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} E_{0x} e^{i(\omega t + \phi_x)} \\ E_{0y} e^{i(\omega t + \phi_y)} \end{bmatrix} = e^{i(\omega t + \phi_x)} \begin{bmatrix} E_{0x} \\ E_{0y} e^{i\phi} \end{bmatrix}.$$

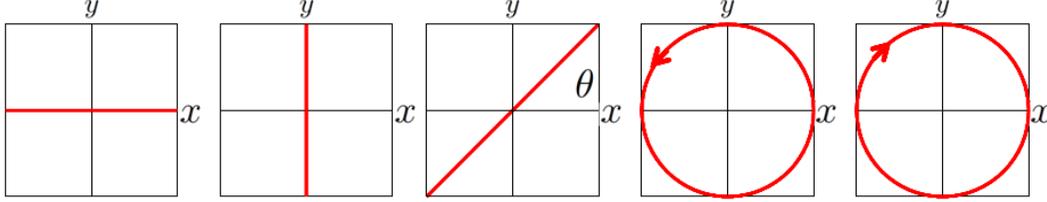
L'état de polarisation est représenté par le vecteur :

$$\mathbf{V} = \begin{bmatrix} E_{0x} \\ E_{0y} e^{i\phi} \end{bmatrix}.$$

L'intensité de l'onde lumineuse  $I = (E_{0x}^2 + E_{0y}^2)$  correspond au produit scalaire  $I = \mathbf{V}^\dagger \cdot \mathbf{V}$ . On exprime aussi le vecteur  $\mathbf{V}$  en s'affranchissant des quantités  $E_{0x}$  et  $E_{0y}$  en notant simplement :

$$\mathbf{V} = \begin{bmatrix} 1 \\ e^{i\phi} \end{bmatrix}. \quad (4.5)$$

Sur la figure ci-dessous, on représente les **vecteurs de Jones normés**  $\mathbf{V}_X$  et  $\mathbf{V}_Y$  associés aux états de polarisation rectiligne selon  $Ox$  et  $Oy$ ; le vecteur  $\mathbf{V}(\theta = \frac{\pi}{4})$  associé à une polarisation rectiligne faisant un angle  $\theta = \frac{\pi}{4}$  avec l'axe  $Ox$  et les vecteurs  $\mathbf{V}_+$  et  $\mathbf{V}_-$  correspondant aux états circulaires pour la valeur  $\phi = \pm \frac{\pi}{2}$  :



$$\mathbf{V}_X = \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix} \quad \mathbf{V}_Y = \begin{bmatrix} 0 \\ 1 \end{bmatrix} \quad \mathbf{V}(\theta = \frac{\pi}{4}) = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 \\ 1 \end{bmatrix} \quad \mathbf{V}_+ = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 \\ i \end{bmatrix} \quad \mathbf{V}_- = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 \\ -i \end{bmatrix}.$$

Ce formalisme est adéquat pour réaliser des opérations géométriques :

- Un état initialement polarisé selon l'axe  $Ox$  effectuant une rotation d'angle  $\theta$  aura pour état de polarisation :

$$\mathbf{V}_\theta = R(\theta)\mathbf{V}_X = \begin{bmatrix} \cos(\theta) & -\sin(\theta) \\ \sin(\theta) & \cos(\theta) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \cos(\theta) \\ \sin(\theta) \end{bmatrix}.$$

En posant  $\theta = \frac{\pi}{4}$  dans l'expression précédente on retrouve bien le vecteur  $\mathbf{V}(\theta = \frac{\pi}{4})$ .

- Une polarisation rectiligne est décomposable en la somme ou différence des polarisations circulaires :

$$\begin{aligned} \mathbf{V}_X &= \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\mathbf{V}_+ + \mathbf{V}_-) = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 \\ i \end{bmatrix} + \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 \\ -i \end{bmatrix} \\ \mathbf{V}_Y &= \begin{bmatrix} 0 \\ 1 \end{bmatrix} = \frac{-i}{\sqrt{2}}(\mathbf{V}_+ - \mathbf{V}_-) = \frac{-i}{2} \begin{bmatrix} 1 \\ i \end{bmatrix} - \frac{-i}{2} \begin{bmatrix} 1 \\ -i \end{bmatrix}. \end{aligned}$$

On notera par la suite :

$$\mathbf{E}_x = \frac{1}{\sqrt{2}}\mathbf{E}_+ + \frac{1}{\sqrt{2}}\mathbf{E}_- = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} E_x \\ iE_y \end{bmatrix} + \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} E_x \\ -iE_y \end{bmatrix}.$$

Un **état elliptique** quelconque est représenté avec les deux paramètres  $\chi$  et  $\phi$  de la figure (4.1) selon :

$$\mathbf{V}(\chi, \phi) = \begin{bmatrix} \cos(\chi) \\ \sin(\chi)e^{i\phi} \end{bmatrix}.$$

On peut aussi écrire le vecteur de Jones d'une polarisation elliptique en fonction des paramètres  $\theta$  et  $\eta$ , qui sont les grandeurs mesurées expérimentalement. Dans le repère propre de l'ellipse ( $Ox'y'$ ), le vecteur de Jones s'écrit :

$$\mathbf{V}(\eta) = \begin{bmatrix} \cos(\eta) \\ i\sin(\eta) \end{bmatrix}.$$

Pour exprimer ce vecteur à nouveau dans le repère du laboratoire ( $Oxy$ ), on effectue une rotation d'un angle  $-\theta$  avec la matrice de rotation  $R(-\theta)$ . L'état de polarisation prend la forme :

$$\mathbf{V}(\eta, \theta) = \begin{bmatrix} \cos(\theta) & -\sin(\theta) \\ \sin(\theta) & \cos(\theta) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \cos(\eta) \\ i\sin(\eta) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \cos(\theta)\cos(\eta) - i\sin(\theta)\sin(\eta) \\ \sin(\theta)\cos(\eta) + i\cos(\theta)\sin(\eta) \end{bmatrix}. \quad (4.6)$$

Dans les expériences de magnéto-optiques réalisées en laboratoire, les angles  $\theta$  et  $\eta$  sont faibles (de l'ordre du mrad). En prenant  $\theta$  et  $\eta$  faibles devant  $2\pi$  dans l'expression (4.6), on obtient :

$$\mathbf{V}(\eta, \theta) \approx \begin{bmatrix} 1 - i\theta\eta \\ \theta + i\eta \end{bmatrix} \approx \begin{bmatrix} 1 \\ \theta + i\eta \end{bmatrix}. \quad (4.7)$$

On utilisera dans la section (4.1.4) cette expression pour définir les phases Kerr et Faraday.

Remarques :

– On représente aussi l'état elliptique sous la forme :

$$\mathbf{V}(\chi, \phi) = \begin{bmatrix} \cos(\chi)e^{-i\frac{\phi}{2}} \\ \sin(\chi)e^{i\frac{\phi}{2}} \end{bmatrix}.$$

Cette forme nous sera utile dans le paragraphe (4.3.2) pour montrer comment sont mesurées expérimentalement les grandeurs  $\theta$  et  $\eta$ .

– Une manière plus rigoureuse de mettre en évidence les liens entre les angles et d'identifier la formule précédente avec la formule (4.6) :

$$\begin{aligned} \cos(\chi)\cos\left(\frac{\phi}{2}\right) - i\cos(\chi)\sin\left(\frac{\phi}{2}\right) &= \cos(\theta)\cos(\eta) - i\sin(\theta)\sin(\eta) \\ \sin(\chi)\cos\left(\frac{\phi}{2}\right) + i\sin(\chi)\sin\left(\frac{\phi}{2}\right) &= \sin(\theta)\cos(\eta) + i\cos(\theta)\sin(\eta). \end{aligned}$$

### 4.1.3 Indices optiques circulaires

Les indices optiques  $n_{\pm}^2 = \epsilon_{xx} \pm i\epsilon_{xy}$  associés aux modes circulaires (+) et (-) du champ électromagnétique sont obtenus à partir des équations de Maxwell-Faraday et de Maxwell-Ampère :

$$\nabla \wedge \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (4.8)$$

$$\nabla \wedge \mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{j} + \mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t}. \quad (4.9)$$

Le terme source  $\mathbf{j}$  est décrit par le courant de polarisation des charges, relié au tenseur de susceptibilité diélectrique  $[\chi]$ , qui permet d'écrire l'équation de Maxwell-Ampère selon :

$$\begin{aligned} \mathbf{j} = \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial t} \epsilon_0 [\chi] \mathbf{E} \quad \Leftrightarrow \quad \nabla \wedge \mathbf{B} &= \mu_0 \frac{\partial}{\partial t} (\epsilon_0 [\chi] \mathbf{E} + \epsilon_0 \mathbf{E}) \\ &= \mu_0 \frac{\partial}{\partial t} (\epsilon_0 (1 + [\chi]) \mathbf{E}) \\ &= \mu_0 \epsilon_0 [\epsilon] \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \end{aligned} \quad (4.10)$$

où  $[\epsilon]$  représente le tenseur de permittivité diélectrique. Le champ électromagnétique est décrit à partir d'une onde plane se propageant selon l'axe  $Oz$  avec  $\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 e^{i(k_z z - \omega t)}$  ce qui nous permet d'écrire les équations (4.8) et (4.10) dans l'espace de Fourier par les transpositions  $\nabla \mapsto i\mathbf{k}$  et  $\partial_t \mapsto -i\omega$ . L'équation de Maxwell-Faraday s'écrit :

$$\begin{aligned} i\mathbf{k} \wedge \mathbf{E} = i\omega \mathbf{B} \quad \Leftrightarrow \quad \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ k \end{bmatrix} \wedge \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \\ 0 \end{bmatrix} &= \omega \begin{bmatrix} B_x \\ B_y \\ 0 \end{bmatrix} \\ \Leftrightarrow \quad \begin{cases} -kE_y = \omega B_x \\ kE_x = \omega B_y \end{cases} \end{aligned} \quad (4.11)$$

Pour l'équation de Maxwell-Ampère on a :

$$\begin{aligned}
 i\mathbf{k} \wedge \mathbf{B} = -i\omega\mu_0\epsilon_0[\epsilon]\mathbf{E} & \Leftrightarrow \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ k \end{bmatrix} \wedge \begin{bmatrix} B_x \\ B_y \\ 0 \end{bmatrix} = -\omega\mu_0\epsilon_0 \begin{bmatrix} \epsilon_{xx} & \epsilon_{xy} & 0 \\ -\epsilon_{xy} & \epsilon_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{zz} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \\ 0 \end{bmatrix} \\
 & \Leftrightarrow \begin{cases} -kB_y = -\omega\mu_0\epsilon_0(\epsilon_{xx}E_x + \epsilon_{xy}E_y) \\ kB_x = -\omega\mu_0\epsilon_0(-\epsilon_{xy}E_x + \epsilon_{xx}E_y) \end{cases}. \quad (4.12)
 \end{aligned}$$

On réinjecte les expressions (4.11) dans (4.12), puis on fait apparaître le carré de l'indice du milieu  $n^2$  avec  $n = \frac{c}{v_\phi} = \frac{ck}{\omega}$  en utilisant la propriété  $\epsilon_0\mu_0c^2 = 1$  :

$$\begin{aligned}
 n^2 E_x &= (\epsilon_{xx}E_x + \epsilon_{xy}E_y) \\
 n^2 E_y &= (-\epsilon_{xy}E_x + \epsilon_{xx}E_y). \quad (4.13)
 \end{aligned}$$

Le système (4.13) se résout en formant le déterminant séculaire pour  $E_x \neq E_y \neq 0$  :

$$\begin{aligned}
 \begin{vmatrix} n^2 - \epsilon_{xx} & \epsilon_{xy} \\ -\epsilon_{xy} & n^2 - \epsilon_{xx} \end{vmatrix} & \Leftrightarrow (n^2 - \epsilon_{xx})^2 + \epsilon_{xy}^2 = 0 \\
 & \Leftrightarrow (n^2 - \epsilon_{xx})^2 = i^2 \epsilon_{xy}^2 \\
 & \Leftrightarrow n_{\pm}^2 = \epsilon_{xx} \pm i\epsilon_{xy}. \quad (4.14)
 \end{aligned}$$

En remplaçant cette expression dans une des équations (4.13) on obtient :

$$(\epsilon_{xx} \pm i\epsilon_{xy})E_x = \epsilon_{xx}E_x + \epsilon_{xy}E_y \quad \Leftrightarrow \quad E_x = \pm iE_y.$$

Cette dernière expression permet de montrer que les vecteurs propres associés aux valeurs propres  $n_{\pm}^2$  correspondent aux états circulaires gauche et droit définis dans la section précédente :

$$\mathbf{E} = \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \end{bmatrix} = E_x \begin{bmatrix} 1 \\ \pm i \end{bmatrix}.$$

#### 4.1.4 Expressions des phases Kerr et Faraday

Dans la littérature, on écrit généralement que la phase du signal électromagnétique après interaction avec l'échantillon contient l'information sur la rotation  $\theta$  et l'ellipticité  $\eta$  par la définition :

$$\phi = \theta + i\eta. \quad (4.15)$$

La rotation correspond à la partie réelle  $\theta = Re(\phi)$  et l'ellipticité à la partie imaginaire  $\eta = Im(\phi)$  de la phase  $\phi$ . On peut exprimer les phases des ondes réfléchie et transmise à l'aide des indices circulaires gauche et droit. On trouve généralement dans les ouvrages pour l'expression de la phase Faraday  $\phi_F$  en transmission :

$$\phi_F = \theta_F + i\eta_F = \frac{\omega d}{2c}(n_+ - n_-), \quad (4.16)$$

et pour la phase Kerr correspondant au phénomène de réflexion :

$$\phi_K = \theta_K + i\eta_K = -i \frac{n_+ - n_-}{n_+ n_- - 1}. \quad (4.17)$$

Pour justifier ces expressions, on propose les raisonnements suivants. Dans le cas de l'**onde transmise correspondant à l'effet Faraday**, l'onde incidente  $\mathbf{E}_i$  rectilignement polarisée est décrite dans la base circulaire comme combinaison linéaire des modes (+) et (-) :

$$\mathbf{E}_i = \frac{1}{\sqrt{2}}\mathbf{E}_+ + \frac{1}{\sqrt{2}}\mathbf{E}_-.$$

Cette onde traverse un milieu d'épaisseur  $d$  dans lequel les vecteurs d'onde pour les modes ( $\pm$ ) sont  $k_0 n_{\pm}$  où  $k_0$  est le vecteur d'onde de la vibration dans le vide. A la sortie de l'échantillon, l'amplitude du champ électrique transmis  $\mathbf{E}_t$  est :

$$\mathbf{E}_t = \frac{1}{2} e^{i\omega t} \begin{bmatrix} E_x \\ iE_y \end{bmatrix} e^{ik_0 n_+ d} + \frac{1}{2} e^{i\omega t} \begin{bmatrix} E_x \\ -iE_y \end{bmatrix} e^{ik_0 n_- d} \quad (4.18)$$

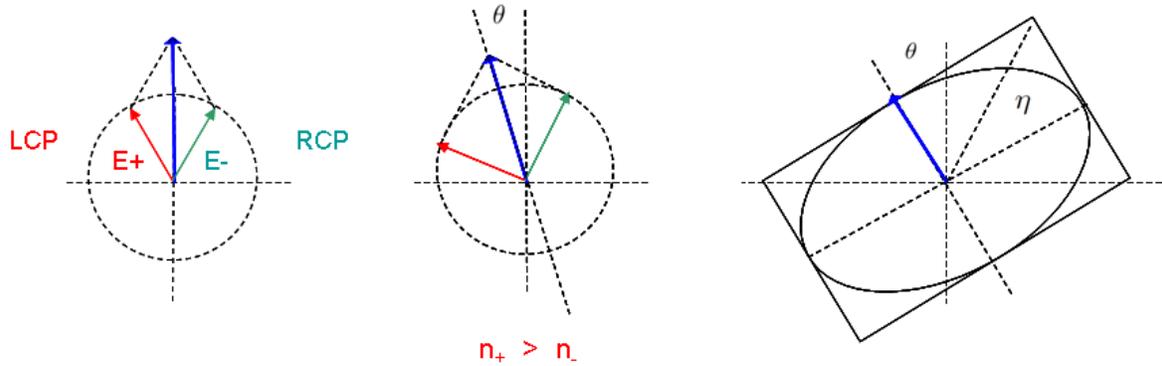
On introduit le déphasage  $\phi = \frac{k_0(n_+ - n_-)d}{2} = \frac{\omega(n_+ - n_-)d}{2c}$  pour écrire la factorisation suivante :

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_t &= \frac{1}{2} e^{i\omega t} e^{i(n_+ + n_-) \frac{k_0 d}{2}} \left( \begin{bmatrix} E_x \\ iE_y \end{bmatrix} e^{i\phi} + \begin{bmatrix} E_x \\ -iE_y \end{bmatrix} e^{-i\phi} \right) \\ &= e^{i\omega t} e^{i(n_+ + n_-) \frac{k_0 d}{2}} \begin{bmatrix} \cos(\phi) E_x \\ \sin(\phi) E_y \end{bmatrix}. \end{aligned} \quad (4.19)$$

L'état de polarisation de l'onde transmise en terme de vecteur de Jones est :

$$\mathbf{V}_t = \begin{bmatrix} \cos(\phi) \\ \sin(\phi) \end{bmatrix}. \quad (4.20)$$

Cette forme de vecteur de Jones correspond à une rotation d'angle  $\phi$  du vecteur champ électrique incident dans le plan ( $Oxy$ ). On peut voir sur la figure ci-dessous que la rotation  $\theta$  se décrit bien par le déphasage  $\phi$  entre les modes (+) et (-).



Cependant, avec cette description, l'onde incidente transmise est toujours polarisée rectilignement. Pour justifier de l'état elliptique de la vibration, il faut tenir compte de **l'absorption et de la nature complexe du vecteur d'onde**  $k_0 n_{\pm} = k'_{\pm} + ik''_{\pm}$  qui se répercute sur la phase  $\phi$ . Pour obtenir la formule (4.16), il suffit d'identifier l'état de polarisation (4.20) avec celui de la formule (4.7) en supposant que la **phase complexe**  $\phi$  est faible devant  $2\pi$  :

$$\mathbf{V}_t = \begin{bmatrix} \cos(\phi) \\ \sin(\phi) \end{bmatrix} \approx \begin{bmatrix} 1 \\ \phi \end{bmatrix} \equiv \begin{bmatrix} 1 \\ \theta + i\eta \end{bmatrix} \Leftrightarrow \phi_F = \theta_F + i\eta_F = \frac{\omega d}{2c} (n_+ - n_-).$$

Pour l'**onde réfléchie associée à l'effet Kerr**, on utilise le coefficient de Fresnel de réflexion en amplitude. Entre deux milieux d'indice  $n_0$  et  $n$  le coefficient s'écrit :

$$r = \frac{n_0 - n}{n_0 + n}.$$

On suppose que l'on peut définir les coefficients  $r_{\pm}$  associés aux modes (+) et (-). Le milieu incident étant de l'air ( $n_0 \approx 1$ ), on aura :

$$r_+ = \frac{1 - n_+}{1 + n_+} \quad r_- = \frac{1 - n_-}{1 + n_-}.$$

L'amplitude de l'onde réfléchie s'écrit :

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_r &= \frac{1}{2} \left( r_+ \begin{bmatrix} E_x \\ iE_y \end{bmatrix} + r_- \begin{bmatrix} E_x \\ -iE_y \end{bmatrix} \right) \\ &= \frac{1}{2} \begin{bmatrix} (r_+ + r_-)E_x \\ (r_+ - r_-)iE_y \end{bmatrix} \\ &= \frac{1}{2}(r_+ + r_-) \begin{bmatrix} E_x \\ \frac{i(r_+ - r_-)}{(r_+ + r_-)}iE_y \end{bmatrix}. \end{aligned}$$

L'état de polarisation de l'onde réfléchie est le vecteur  $\mathbf{V}_r$ , il est identifié à la phase complexe  $\phi_K$  par analogie avec le cas en transmission :

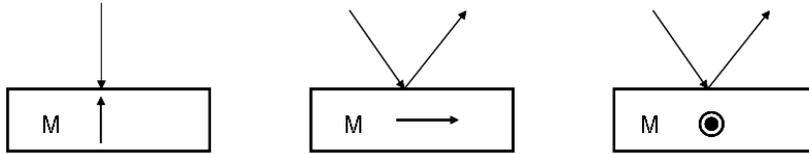
$$\mathbf{V}_r = \begin{bmatrix} 1 \\ \frac{i(r_+ - r_-)}{(r_+ + r_-)} \end{bmatrix} \equiv \begin{bmatrix} 1 \\ \phi_K \end{bmatrix} \equiv \begin{bmatrix} 1 \\ \theta_K + i\eta_K \end{bmatrix} \Leftrightarrow \phi_K = \theta_K + i\eta_K = \frac{i(r_+ - r_-)}{(r_+ + r_-)}.$$

Pour obtenir la formule (4.17), il suffit de remplacer  $r_{\pm}$  par leurs expressions :

$$\begin{aligned} \phi_K &= i \frac{(r_+ - r_-)}{(r_+ + r_-)} = i \frac{\left( \frac{1 - n_+}{1 + n_+} - \frac{1 - n_-}{1 + n_-} \right)}{\left( \frac{1 - n_+}{1 + n_+} + \frac{1 - n_-}{1 + n_-} \right)} \\ &= i \frac{(1 - n_+)(1 + n_-) - (1 + n_+)(1 - n_-)}{(1 - n_+)(1 + n_-) + (1 + n_+)(1 - n_-)} \\ &= -i \frac{n_+ - n_-}{n_+ n_- - 1}. \end{aligned}$$

### Remarques

- Dans le cas de l'effet Kerr magnéto-optique, il existe trois types de configuration : polaire, longitudinale et transverse, schématisées respectivement de la manière suivante :



- Dans le cas d'une incidence oblique, le coefficient de réflexion en amplitude dépend de l'angle d'incidence  $i_0$  et de l'angle de transmission  $i_t$ . Les coefficients ne sont pas les mêmes selon que l'onde incidente soit polarisée parallèlement ou perpendiculairement au plan d'incidence :

$$r_{\parallel} = \frac{n_0 \cos(i_t) - n \cos(i_0)}{n_0 \cos(i_t) + n \cos(i_0)} \quad r_{\perp} = \frac{n_0 \cos(i_0) - n \cos(i_t)}{n_0 \cos(i_0) + n \cos(i_t)}.$$

- Il existe des théories de magnéto-optique plus abouties, qui tiennent compte des multiples réflexions de l'onde électromagnétique dans le solide. On pourra en avoir un aperçu dans [83], [84] ou [85].

### Paramètre de Voigt

Dans les deux cas, transmission et réflexion, la rotation et l'ellipticité dépendent de la différence d'indice  $\Delta n = n_+ - n_-$ . On évalue la valeur de  $\Delta n$  en supposant que la partie non diagonale  $\epsilon_{xy}$  est faible devant la composante diagonale  $\epsilon_{xx}$ . Cette hypothèse est vérifiée plus loin. Ainsi :

$$\begin{aligned}\Delta n &= (\epsilon_{xx} + i\epsilon_{xy})^{1/2} - (\epsilon_{xx} - i\epsilon_{xy})^{1/2} \\ &= \sqrt{\epsilon_{xx}} \left(1 + \frac{i\epsilon_{xy}}{\epsilon_{xx}}\right)^{1/2} - \sqrt{\epsilon_{xx}} \left(1 - \frac{i\epsilon_{xy}}{\epsilon_{xx}}\right)^{1/2} \\ &\approx \sqrt{\epsilon_{xx}} \left(1 + \frac{i\epsilon_{xy}}{2\epsilon_{xx}}\right) - \sqrt{\epsilon_{xx}} \left(1 - \frac{i\epsilon_{xy}}{2\epsilon_{xx}}\right) \\ &\approx \frac{i\epsilon_{xy}}{\sqrt{\epsilon_{xx}}}.\end{aligned}$$

Cette dernière expression met en évidence l'importance de la nature anisotrope du phénomène. La grandeur :

$$Q = -\frac{i\epsilon_{xy}}{\epsilon_{xx}}$$

est appelée paramètre de Voigt. On l'exprime parfois en décomposant le tenseur diélectrique en sa partie diagonale et non diagonale :

$$[\epsilon] = \begin{bmatrix} \epsilon_{xx} & \epsilon_{xy} & 0 \\ -\epsilon_{xy} & \epsilon_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{zz} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \epsilon_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{zz} \end{bmatrix} + \epsilon_{xx} \begin{bmatrix} 0 & iQ & 0 \\ -iQ & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}.$$

Comme  $\epsilon_{xy}$  est proportionnelle à l'aimantation  $\mathbf{M}$  (cf section suivante) on exprime parfois la partie non diagonale en terme de **courant magnéto-optique** dans les équations de Maxwell selon [86] :

$$\mathbf{j}^{MO} = \epsilon_{xx} \begin{bmatrix} 0 & iQ & 0 \\ -iQ & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{bmatrix} = \alpha \mathbf{M} \wedge \mathbf{E}.$$

Nous reviendrons plus tard dans le chapitre 5 sur ce terme source magnéto-optique.

## 4.2 Modèles microscopiques

« Die Gedanken sind frei. »

Die ursprüngliche Texte und  
Komponist sind unbekannt.

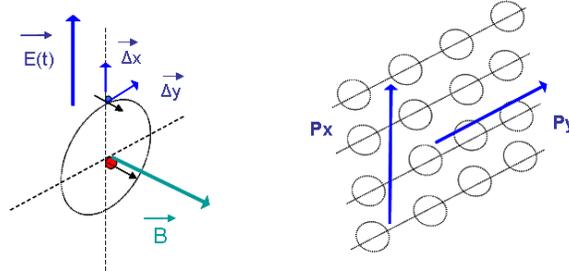
On présente dans cette section **deux descriptions** microscopiques de l'effet Faraday qui permettent de construire le tenseur diélectrique  $[\epsilon]$ , et de déterminer les éléments diagonaux et non diagonaux intervenant dans la réponse magnéto-optique.

- La première est une description **classique** se basant sur le modèle de Drude. Le tenseur diélectrique  $[\epsilon]$  est calculé à l'aide du tenseur de susceptibilité diélectrique  $[\chi]$ , reliant la polarisation des charges au champ électrique excitateur  $\mathbf{P} = \epsilon_0[\chi]\mathbf{E}$  selon  $[\epsilon] = 1 + [\chi]$ . Le modèle classique décrit un matériau diélectrique soumis à un champ magnétique externe. On présente le modèle en détail car nous l'utiliserons en section (5.1) et (6.2).

- La seconde est une description **quantique** qui vise à décrire l'origine de l'effet Faraday dans les matériaux ferromagnétiques. Les éléments de tenseur sont obtenus en calculant le courant macroscopique  $\mathbf{j} = [\sigma]\mathbf{E} + \mu_0\epsilon_0[\epsilon]\frac{\partial\mathbf{E}}{\partial t}$  à partir de la densité de courant de probabilité quantique.

#### 4.2.1 Description classique : le modèle de Voigt

Le modèle de Voigt [57] est une extension du modèle de Drude de l'électron élastiquement lié qui ajoute la force magnétique de Lorentz. Le milieu matériel est représenté par une assemblée d'oscillateurs harmoniques indépendants.



Ils modélisent les charges électroniques élastiquement liées à un noyau effectif. L'électron est soumis à la force de Lorentz, à une force de rappel découlant d'un potentiel harmonique et à une force de frottement fluide. Le principe fondamental de la dynamique appliqué à un électron s'écrit ( $e > 0$ ) :

$$\ddot{\mathbf{r}} + \frac{1}{\tau}\dot{\mathbf{r}} + \omega_0^2\mathbf{r} = -\frac{e}{m}(\mathbf{E} + \dot{\mathbf{r}} \wedge \mathbf{B}). \quad (4.21)$$

Le champ électrique excitateur est supposé être une fonction cosinusoidale du temps. D'après la théorie de la réponse linéaire les solutions de l'équation différentielle sont du type :

$$\mathbf{E}(t) \approx \mathbf{E}(e^{i\omega t} + e^{-i\omega t}) \quad \Rightarrow \quad \mathbf{r}(t) = \mathbf{r}(\omega)e^{i\omega t} + \mathbf{r}(-\omega)e^{-i\omega t},$$

où le rayon vecteur  $\mathbf{r}(t)$  représente l'écart à la position d'équilibre provoqué par le champ :  $\mathbf{r}(t) = \Delta x\mathbf{e}_x + \Delta y\mathbf{e}_y$ . On considère uniquement le mode de vibration associé à la pulsation  $\omega$ , le mode associé à la pulsation  $-\omega$  étant obtenu par transposition. On écrit pour la vitesse et l'accélération :

$$\begin{cases} \dot{\mathbf{r}}(t) = i\omega\mathbf{r}(t) \\ \ddot{\mathbf{r}}(t) = -\omega^2\mathbf{r}(t) \end{cases},$$

que l'on réinjecte dans l'équation différentielle (4.21). Après simplification de la dépendance temporelle  $e^{i\omega t}$  l'équation devient :

$$\begin{aligned} \left(\omega_0^2 - \omega^2 + \frac{i\omega}{\tau}\right)\mathbf{r} &= -\frac{e}{m}\mathbf{E} - \frac{ei\omega}{m}\mathbf{r} \wedge \mathbf{B} \\ D(\omega)\mathbf{r} &= -\frac{e}{m}\mathbf{E} - \frac{ei\omega}{m}\mathbf{r} \wedge \mathbf{B}, \end{aligned} \quad (4.22)$$

où on a posé  $D(\omega) = \left(\omega_0^2 - \omega^2 + \frac{i\omega}{\tau}\right)$ . On passe ensuite aux grandeurs macroscopiques de polarisation volumique en considérant le milieu de volume  $V$  constitué de  $N$  oscillateurs identiques. La polarisation volumique s'écrit :

$$\mathbf{P} = \frac{1}{V} \sum_i -e\mathbf{r}_i.$$

Ainsi avec  $n = N/V$  la densité volumique électronique l'équation (4.22) permet d'écrire la polarisation volumique selon :

$$\mathbf{P} = \frac{ne^2}{mD(\omega)} \mathbf{E} - \frac{e i \omega}{mD(\omega)} \mathbf{P} \wedge \mathbf{B}.$$

On introduit la pulsation plasma  $\omega_p^2 = \frac{ne^2}{m\epsilon_0}$  et on suppose ensuite que le champ magnétique statique est orienté selon l'axe  $\mathbf{e}_z$  :  $\mathbf{B} = B\mathbf{e}_z$ . Ainsi :

$$\mathbf{P} = \chi\epsilon_0 \mathbf{E} - i\xi \mathbf{P} \wedge \mathbf{e}_z \quad \text{avec} \quad \begin{cases} \chi = \frac{ne^2}{m\epsilon_0 D(\omega)} = \frac{\omega_p^2}{D(\omega)} \\ \xi = \frac{e\omega B}{mD(\omega)} \end{cases}.$$

On voit dans l'équation précédente que c'est le terme  $\xi$ , dépendant du champ magnétique qui **brise l'isotropie de la polarisation**. La projection de la relation vectorielle donne un système d'équations couplées pour les composantes de la polarisation volumique que l'on peut résoudre :

$$\begin{cases} P_x = \chi\epsilon_0 E_x - i\xi P_y \\ P_y = \chi\epsilon_0 E_y + i\xi P_x \\ P_z = \chi\epsilon_0 E_z \end{cases} \Leftrightarrow \begin{cases} P_x = \frac{\chi\epsilon_0}{1-\xi^2} E_x - \frac{i\xi\chi\epsilon_0}{1-\xi^2} E_y \\ P_y = \frac{\chi\epsilon_0}{1-\xi^2} E_y + \frac{i\xi\chi\epsilon_0}{1-\xi^2} E_x \\ P_z = \chi\epsilon_0 E_z \end{cases},$$

permettant d'obtenir l'expression du tenseur de susceptibilité  $[\chi]$  :

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 [\chi] \mathbf{E} = \epsilon_0 \begin{bmatrix} \frac{\chi}{1-\xi^2} & -\frac{i\xi\chi}{1-\xi^2} & 0 \\ \frac{i\xi\chi}{1-\xi^2} & \frac{\chi}{1-\xi^2} & 0 \\ 0 & 0 & \chi \end{bmatrix} \mathbf{E} = \epsilon_0 \begin{bmatrix} \chi_{xx} & \chi_{xy} & 0 \\ -\chi_{xy} & \chi_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & X \end{bmatrix} \mathbf{E}.$$

On forme ensuite l'expression du tenseur diélectrique avec  $\mathbf{D} = \epsilon_0(1 + [\chi])\mathbf{E} = \epsilon_0[\epsilon]\mathbf{E}$  pour en déduire les composantes  $\epsilon_{xx}$  et  $\epsilon_{xy}$  :

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \begin{bmatrix} \epsilon_{xx} & \epsilon_{xy} & 0 \\ -\epsilon_{xy} & \epsilon_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & X \end{bmatrix} \mathbf{E} \quad \Leftrightarrow \quad \begin{aligned} \epsilon_{xx} &= 1 + \frac{\chi}{1-\xi^2} = 1 + \chi_{xx} \\ \epsilon_{xy} &= -\frac{i\xi\chi}{1-\xi^2} = -i\xi\chi_{xx} = \chi_{xy}. \end{aligned} \quad (4.23)$$

### Paramètre magnéto-optique

Le terme responsable de l'anisotropie du matériau est le facteur  $\xi$ . Examinons le rapport  $\epsilon_{xx}/\epsilon_{xy}$  pour des pulsations optiques. Dans cette gamme de pulsations on aura  $D(\omega) = (\omega_0^2 - \omega^2 + \frac{i\omega}{\tau}) \approx 10^{30} \text{ s}^{-2}$ , et  $\omega_p^2 \approx 10^{30} \text{ s}^{-2}$  également, ce qui donne  $\chi_{xx} \approx 1$ . Pour un champ magnétique,  $B \approx 1 \text{ T}$  :

$$\frac{\epsilon_{xy}}{\epsilon_{xx}} = \frac{-i\xi\chi_{xx}}{1 + \chi_{xx}} \approx -i\xi = -i \frac{e\omega B}{mD(\omega)} \approx \frac{10^{-19} * 10^{15} * 1}{10^{-30} * 10^{30}} \approx 10^{-4} \ll 1.$$

On voit bien que le terme anisotrope est petit devant le terme isotrope. On justifie le développement limité utilisé au chapitre précédent. On justifie également le fait que le **signal magnéto-optique est proportionnel au champ magnétique** appliqué par le biais du facteur  $\xi$  :

$$\phi_F \approx n_+ - n_- \approx i \frac{\epsilon_{xy}}{\sqrt{\epsilon_{xx}}} \approx \xi \approx B.$$

### Matériaux ferromagnétiques

Pour des matériaux ferromagnétiques, le champ externe appliqué sur le matériau n'est pas suffisant pour obtenir les valeurs expérimentales mesurées. Voigt a montré que la concordance entre la théorie et l'expérience ne peut être obtenue qu'avec un champ magnétique de  $\approx 10^7$  Oersted soit  $\approx 10^3$  Tesla. Il apparaît que cet ordre de grandeur correspond à celui du champ magnétique effectif associé au champ moléculaire de Weiss  $\mathbf{B}_{eff} = \lambda \mathbf{M}$  nécessaire pour expliquer l'aimantation spontanée des corps ferromagnétiques.

#### 4.2.2 Description quantique : l'importance du couplage spin-orbite

Dans la description quantique, l'origine de l'effet Kerr ou Faraday dans les matériaux ferromagnétiques est attribuée à **l'interaction spin-orbite**. Les ferromagnétiques comme le nickel, le fer ou le cobalt sont des métaux de transition, dans lesquels le moment cinétique orbital est bloqué. Le champ magnétique effectif moléculaire de Weiss n'affecte pas le mouvement des charges (nous reviendrons plus tard sur cette étrange affirmation...) et il faut invoquer l'interaction spin-orbite  $H_{SO}$  pour coupler les propriétés optiques des charges aux propriétés magnétiques des spins :

$$H_{SO} = \frac{e\hbar}{4m^2c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge \mathbf{p}) = \frac{e}{2m^2c^2} \mathbf{S} \cdot (\mathbf{E} \wedge \mathbf{p}).$$

Ces travaux ont été réalisés essentiellement par Hulme (1932), Kittel (1951), Argyres (1955), Bennett et Stern (1965). On se propose de présenter succinctement les idées développées par chacun de ces auteurs en présentant des "morceaux choisis" des articles référencés. On présentera plus en détails les travaux d'Argyres qui constituent une période charnière dans la description théorique des effets magnéto-optiques dans les ferromagnétiques.

##### Hulme 1932

Hulme est l'un des premiers à proposer l'interaction spin-orbite pour expliquer l'effet Faraday dans les matériaux ferromagnétiques [58]. Il note les indices circulaires  $n_\lambda$  et  $n_\rho$  et utilise la théorie de l'effet Faraday développée par Born et Jordan [59] impliquant les quantités :

$$\begin{aligned} n_\lambda^2 - 1 &= \frac{4\pi}{V} (\alpha_m^r + \beta_m^r) & \alpha_m^r &= \frac{2}{h} \sum_{r',m'} \nu_{m'm}^{r'r} \frac{|P_{xm'm}^{r'r}|^2}{(\nu_{m'm}^{r'r})^2 - \nu^2} \\ n_\rho^2 - 1 &= \frac{4\pi}{V} (\alpha_m^r - \beta_m^r) & \beta_m^r &= \frac{2}{h} \sum_{r',m'} (m - m') \nu_{m'm}^{r'r} \frac{|P_{xm'm}^{r'r}|^2}{(\nu_{m'm}^{r'r})^2 - \nu^2}, \end{aligned}$$

avec  $\alpha_m^r$  et  $\beta_m^r$  les fonctions de réponse associées à un état quantique  $r$  de nombre quantique orbital  $m$  dépendant de l'élément de matrice  $P_{xm'm}^{r'r} = \langle r, m | \sum_r q_r | r', m' \rangle$  représentant le moment dipolaire. La quantité  $h\nu_{m'm}^{r'r}$  est explicitée pour  $m' = m \pm 1$  comme :

$$h\nu_{m\pm 1,m}^{r'r} = W \pm \omega \quad (4.24)$$

où  $W$  représente la contribution de l'énergie d'échange et  $\omega \approx \langle r | H_{SO} | r \rangle$  les éléments diagonaux du hamiltonien d'interaction spin-orbite  $H_{SO}$ . En notant  $n = n_\lambda + n_\rho$  et  $\Delta n = (n_\rho - n_\lambda)$  il parvient, moyennant quelques hypothèses à écrire la rotation Faraday  $R$  sous la forme :

$$R = \frac{\pi d}{\lambda} (n_\rho - n_\lambda) \approx \frac{\pi d (n^2 - 1)(n^2 + 2)}{6\lambda n} \frac{4h\nu\omega \langle m \rangle}{W^2 - h^2\nu^2} \quad (4.25)$$

où  $\langle m \rangle$  est la valeur moyenne statistique de l'aimantation et  $(\nu, \lambda)$  la fréquence et la longueur d'onde de la lumière. Cette expression lui permet de retrouver l'ordre de grandeur observé pour le fer.

**Kittel 1951**

Le modèle est cependant perfectible. Il est pretexté que le blocage du moment orbital dans les métaux de transition ne permet pas d'obtenir une levée de dégénérescence dans l'expression de l'énergie. Kittel montre que l'incorporation de l'effet du spin-orbite dans l'expression de la fonction d'onde permet d'obtenir le bon ordre de grandeur [60].

**Argyres 1955**

L'article d'Argyres [61] intitulé *Faraday and Kerr effects in ferromagnetics* donne une expression complète des éléments diagonaux et non diagonaux du tenseur diélectrique. Il détermine le courant macroscopique de conductivité et de polarisation des équations de Maxwell à partir de l'expression de la densité de courant de probabilité quantique. La somme sur les états quantiques  $\lambda$  est associée au courant macroscopique :

$$\mathbf{J} = \sum_{\lambda s} \frac{i\hbar}{2m} (\Psi_{\lambda s}^* \nabla \Psi_{\lambda s} - \Psi_{\lambda s} \nabla \Psi_{\lambda s}^*) - \frac{e^2}{m} \mathbf{A} \Psi_{\lambda s}^* \Psi_{\lambda s} \quad (4.26)$$

$$= [\sigma] \mathbf{E} + [\alpha] \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} = \begin{bmatrix} \sigma_0 & \sigma_1 & 0 \\ \sigma_1 & \sigma_0 & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_0 \end{bmatrix} \mathbf{E} + \begin{bmatrix} \alpha_0 & \alpha_1 & 0 \\ \alpha_1 & \alpha_0 & 0 \\ 0 & 0 & \alpha_0 \end{bmatrix} \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t}, \quad (4.27)$$

où  $\Psi_{\lambda s}$  est solution de l'équation de Schrödinger :

$$i\hbar \frac{\partial \Psi_{\lambda s}}{\partial t} = H \Psi_{\lambda s} = \left( \frac{\mathbf{p}^2}{2m} + V(\mathbf{r}) + \frac{1}{2m^2 c^2} \mathbf{s} \cdot (\nabla V(\mathbf{r}) \wedge \mathbf{p}) + \frac{e}{mc} \mathbf{p} \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) \right) \Psi_{\lambda s}.$$

Pour obtenir ces expressions, on résout d'abord l'équation de Schrödinger pour obtenir l'expression mathématique de la fonction d'onde  $\Psi_{\lambda s}$ . Le hamiltonien  $H$  est décomposé en trois parties :

$$H = \underbrace{\frac{\mathbf{p}^2}{2m} + V(\mathbf{r})}_{H_0} + \underbrace{\frac{1}{2m^2 c^2} \mathbf{s} \cdot (\nabla V(\mathbf{r}) \wedge \mathbf{p})}_{H'} + \underbrace{\frac{e}{mc} \mathbf{p} \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}, t)}_{H''}.$$

$H_0$  est le hamiltonien d'un électron libre soumis au potentiel périodique du réseau  $V(\mathbf{r})$ . L'électron est représenté par une fonction d'onde de Bloch  $\psi_n(\mathbf{k}, \mathbf{r})$  où  $u_n(\mathbf{k}, \mathbf{r})$  représente la périodicité du réseau :

$$H_0 \psi_n(\mathbf{k}, \mathbf{r}) = \left( \frac{\mathbf{p}^2}{2m} + V(\mathbf{r}) \right) \psi_n(\mathbf{k}, \mathbf{r}) = E_n(\mathbf{k}) \psi_n(\mathbf{k}, \mathbf{r}), \quad \psi_n(\mathbf{k}, \mathbf{r}) = \frac{1}{N^{1/2}} e^{ik \cdot r} u_n(\mathbf{k}, \mathbf{r}).$$

La fonction d'onde  $\psi_n$  est ensuite perturbée par l'interaction spin-orbite. La nouvelle fonction d'onde  $\phi_{\lambda s}(\mathbf{r})$  est déterminée à l'aide de la théorie des perturbations stationnaires où  $s$  et  $\alpha(\pm 1)$  représentent les états de spin et les valeurs projetées sur l'axe  $Oz$  :

$$\begin{aligned} (H_0 + H') \phi_{\lambda s}(\mathbf{r}) &= \left( \frac{\mathbf{p}^2}{2m} + V(\mathbf{r}) + \frac{1}{2m^2 c^2} \mathbf{s} \cdot (\nabla V(\mathbf{r}) \wedge \mathbf{p}) \right) \phi_{\lambda s}(\mathbf{r}) = \epsilon_\lambda \phi_{\lambda s}(\mathbf{r}), \\ \phi_{\lambda s}(\mathbf{r}) &= (\psi_n(\mathbf{k}, \mathbf{r}) \pm \chi_n(\mathbf{k}, \mathbf{r})) \alpha(\pm 1) \\ &= (\psi_n(\mathbf{k}, \mathbf{r}) \pm \sum_{m \neq n} b_{nm}(\mathbf{k}) \psi_m(\mathbf{k}, \mathbf{r})) \alpha(\pm 1), \quad \epsilon_\lambda = \hbar \omega_\lambda \end{aligned} \quad (4.28)$$

où le coefficient  $b_{nm}(\mathbf{k})$  contenant l'information vaut :

$$b_{nm}(\mathbf{k}) = -\frac{i\hbar}{4m^2 c^2 (E_n(\mathbf{k}) - E_m(\mathbf{k}))} \int \psi_m^*(\mathbf{k}, \mathbf{r}) (\nabla V \wedge \nabla)_z \psi_n(\mathbf{k}, \mathbf{r}) d\tau. \quad (4.29)$$

La fonction d'onde  $\chi_n(\mathbf{k}, \mathbf{r})$  est également explicitée sous la forme d'une onde de Bloch  $w_n(\mathbf{k}, \mathbf{r})$  contenant l'information  $b_{nm}(\mathbf{k})$  sur la perturbation spin-orbite :

$$\chi_n(\mathbf{k}, \mathbf{r}) = \frac{1}{N^{1/2}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} w_n(\mathbf{k}, \mathbf{r}) = \frac{1}{N^{1/2}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \sum_{m \neq n} b_{nm}(\mathbf{k}) u_m(\mathbf{k}, \mathbf{r}). \quad (4.30)$$

La troisième partie  $H''$  représente l'interaction de l'électron avec la lumière. La fonction d'onde  $\Psi_{\lambda s}$  du système est ensuite obtenue à l'aide de la théorie des perturbations dépendantes du temps au premier ordre :

$$\begin{aligned} \Psi_{\lambda s}(\mathbf{r}, t) = \phi_{\lambda s}(\mathbf{r}) e^{-i\omega_{\lambda} t} + \sum_{\lambda', \sigma} e^{-i\omega_{\lambda'} t} \phi_{\lambda' \sigma}(\mathbf{r}) \frac{ie}{mc} \left[ \frac{\exp[i(\omega_{\lambda \lambda'}^{\sigma s} - \omega)] - 1}{\omega_{\lambda \lambda'}^{\sigma s} - \omega} \int \phi_{\lambda' \sigma}^*(\mathbf{r}) a(\mathbf{r}) \cdot \nabla \phi_{\lambda \sigma}(\mathbf{r}) d\tau \right. \\ \left. + \frac{\exp[i(\omega_{\lambda \lambda'}^{\sigma s} + \omega)] - 1}{\omega_{\lambda \lambda'}^{\sigma s} + \omega} \int \phi_{\lambda' \sigma}^*(\mathbf{r}) a^*(\mathbf{r}) \cdot \nabla \phi_{\lambda \sigma}(\mathbf{r}) d\tau \right] \end{aligned} \quad (4.31)$$

où  $\omega_{\lambda \lambda'} = \omega_{\lambda} - \omega_{\lambda'}$  d'après (4.28), et les amplitudes complexes  $a(\mathbf{r})$  et  $a^*(\mathbf{r})$  du potentiel vecteur  $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$  sont définies selon :

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = a(\mathbf{r}) e^{-i\omega t} + a^*(\mathbf{r}) e^{i\omega t} \quad \Leftrightarrow \quad \begin{cases} a e^{-i\omega t} = \frac{1}{2} \mathbf{A} + \frac{i}{2\omega} \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} \\ a^* e^{-i\omega t} = \frac{1}{2} \mathbf{A} - \frac{i}{2\omega} \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} \end{cases} \quad (4.32)$$

La fonction d'onde  $\Psi_{\lambda s}$  (4.31) est alors réinjectée dans l'expression (4.26) et permet d'obtenir une expression du courant en deux parties :

$$\mathbf{J} = \mathbf{J}^{(0)} \left( u_n, \mathbf{A}, \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} \right) + \mathbf{J}^{(1)} \left( w_n, \mathbf{A}, \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} \right),$$

où  $\mathbf{J}^{(0)}$  correspond au courant en l'absence de spin-orbite et  $\mathbf{J}^{(1)}$  la partie du courant liée à l'interaction spin-orbite. Le courant macroscopique est obtenu en sommant sur l'ensemble des états quantiques et la séparation entre conductivité et polarisation est effectuée à l'aide des quantités  $\mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{A}}{c \partial t}$  et  $\frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} = \frac{\omega^2}{c} \mathbf{A}$  introduites par (4.32) (unités CGS). Après de longs calculs le courant  $\mathbf{J}$  prend la forme :

$$\mathbf{J} = [\sigma] \mathbf{E} + [\alpha] \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} = \begin{bmatrix} \sigma_0 & \sigma_1 & 0 \\ \sigma_1 & \sigma_0 & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_0 \end{bmatrix} \mathbf{E} + \begin{bmatrix} \alpha_0 & \alpha_1 & 0 \\ \alpha_1 & \alpha_0 & 0 \\ 0 & 0 & \alpha_0 \end{bmatrix} \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t},$$

avec pour expression des éléments de tenseurs :

$$\begin{aligned} \sigma_0 &= \frac{e^2 \hbar}{8\pi^2 m^2} \frac{1}{3} \sum_{m>n} \int_V \frac{\delta(\omega_{mn} - \omega)}{\omega} \left| \int u_m^*(\mathbf{k}, \mathbf{r}) \nabla u_n(\mathbf{k}, \mathbf{r}) d\tau_0 \right|^2 d\mathbf{k} \\ \alpha_0 &= \frac{e^2 \hbar}{4\pi^2 m^2} \frac{1}{3} \sum_{m>n} \int_V \frac{\omega_{mn}}{\omega(\omega_{mn}^2 - \omega^2)} \left| \int u_m^*(\mathbf{k}, \mathbf{r}) \nabla u_n(\mathbf{k}, \mathbf{r}) d\tau_0 \right|^2 d\mathbf{k} - \frac{e^2 n}{m\omega} \\ \sigma_1 &= \frac{e^2 \hbar}{4\pi^2 m^2} \sum_{m>n} \int_V \frac{1}{\omega_{mn}^2 - \omega^2} Q_{mn}(\mathbf{k}) d\mathbf{k} \\ \alpha_1 &= -\frac{e^2 \hbar}{8\pi^2 m^2} \sum_{m>n} \int_V \frac{\delta(\omega_{mn} - \omega)}{\omega} Q_{mn}(\mathbf{k}) d\mathbf{k}, \end{aligned} \quad (4.33)$$

où la quantité  $\sum_{m>n}$  correspond aux états des bandes non remplies, l'intégrale  $\int_V d\mathbf{k}$  a été substituée à la somme  $\sum_{\lambda'}$  dans l'expression (4.31), le volume  $d\tau_0$  correspond au volume de la cellule élémentaire du cristal et la quantité  $Q_{mn}(\mathbf{k})$  contenant la perturbation par le spin-orbite s'écrit :

$$Q_{mn} = 2Re \left[ \frac{1}{i} \int u_m \frac{\partial u_n^*}{\partial y} d\tau_0 \int \left( u_m^* \frac{\partial w_n}{\partial x} + w_m^* \frac{\partial u_n}{\partial x} \right) d\tau_0 \right].$$

L'article se poursuit par la démonstration de l'expression des phases Kerr et Faraday que nous avons précisées dans la section (4.1.4). Avec les notations utilisées dans (4.27) les indices optiques  $N_{\pm}$  et la différence  $N_+ - N_-$  prennent la forme :

$$\begin{aligned} N_{\pm}^2 &= ((1 + 4\pi(\alpha_0 - i\sigma_0/\omega) \pm 4\pi(i\alpha_1 + \sigma_1/\omega)) \\ N_+ - N_- &\approx \frac{4\pi(i\alpha_1 + \sigma_1/\omega)}{n - ik}, \end{aligned}$$

avec  $n$  l'indice réel de réfraction et  $k$  le coefficient d'extinction. Pour obtenir l'ordre de grandeur de l'effet Faraday, il suppose ensuite que  $|\alpha_1| = |\sigma_1/\omega|$  (hypothèse non justifiée dans le papier mais il précise que c'est approximatif) afin de se ramener à l'évaluation unique de  $\sigma_1$  pour laquelle il fait les approximations suivantes :

- L'intégrale sur les  $\mathbf{k}$  est associée aux états non appariés de spin. Ce nombre d'état est ramené au rapport de l'aimantation à saturation avec la valeur du magnéton élémentaire de Bohr.

$$\int_V d\mathbf{k} = \frac{(2\pi)^3 M_s}{\mu_B}. \quad (4.34)$$

- Le calcul de  $Q_{mn}$  : en définissant  $\int u_m^* \partial_x u_n d\tau_0 = \langle m | \partial_x | n \rangle$  et à l'aide de la formule (4.29) on écrit la quantité  $w_n = \sum_{l \neq n} b_{nl} u_l = \sum_{l \neq n} \frac{1}{E_l - E_n} \langle l | O | n \rangle$  où  $O = -(i\hbar^2/4m^2c^2)(\nabla V \wedge \nabla)_z$ .  $Q_{mn}$  devient :

$$\begin{aligned} Q_{mn} &= 2Re \left[ \frac{1}{i} \int u_m \frac{\partial u_n^*}{\partial y} d\tau_0 \int \left( u_m^* \frac{\partial w_n}{\partial x} + w_m^* \frac{\partial u_n}{\partial x} \right) d\tau_0 \right] \\ &= \frac{2}{i} \langle m | \partial_x | n \rangle^* \left[ \sum_{l \neq n} \frac{\langle l | O | n \rangle}{E_l - E_n} \langle m | \partial_x | l \rangle + \sum_{l \neq m} \frac{\langle l | O | m \rangle^*}{E_m - E_l} \langle l | \partial_x | n \rangle \right]. \end{aligned}$$

L'indice  $m$  est associé aux bandes  $4s$  et les indices  $n$  et  $l$  aux bandes  $3d$ , si bien que la différence  $(E_n - E_l)$  plus faible que  $(E_m - E_l)$  permet de négliger la deuxième somme. On obtient avec  $\Delta E = E_m - E_l$  en moyenne :

$$Q_{mn} \approx 2/(i\Delta E) \langle m | \partial_x | n \rangle^* \sum_l \langle l | O | n \rangle \langle m | \partial_x | l \rangle.$$

La somme  $\sum_l \langle l | O | n \rangle$  est précisée dans la référence [62], où les fonctions d'onde de Bloch des bandes  $3d$ , obtenues avec la méthode des liaisons fortes s'écrivent  $\Psi_n \approx \sum_R e^{ikR} \phi_n(R-r)$ , et où  $\phi_n(\mathbf{r}) = \langle \mathbf{r} | n \rangle = yzf(r)$ . Ensuite, faisant référence à [63] on simplifie  $\langle l | O | n \rangle \approx A \langle l | L_z | n \rangle = A/i$  avec  $A$  le paramètre spin-orbite pour un atome libre et  $\langle l | L_z | n \rangle = 1/i$ , seul élément de matrice non nul pour  $| l \rangle = zxf(r)$ , parmi les 5 fonctions d'onde atomiques  $3d$  :

$$Q_{mn} \approx (2/\Delta E)A \langle m | \partial_x | n \rangle^* \langle m | \partial_x | l \rangle. \quad (4.35)$$

Pour finir, on transforme  $\langle m | \partial_x | n \rangle = (m/\hbar^2)(E_m - E_n) \langle m | x | n \rangle$  et les quantités  $\langle m | x | n \rangle$  et  $\langle m | y | n \rangle$  sont estimées à  $10^{-9}$  cm (ce qui est très petit!!).

Après ces simplifications, les différences d'énergies entre états  $n$ ,  $m$  et  $l$  sont évaluées à l'aide d'un diagramme de Slater ([64], [65]). On obtient finalement partant de (4.33) et des approximations (4.34) et (4.35) l'expression des éléments non diagonaux en fonction du paramètre de spin-orbite  $A$  et de l'aimantation  $M$  :

$$\begin{aligned} |\sigma_1| &\approx 10^{23} A M_s \\ |\alpha_1| &\approx |\sigma_1/\omega|. \end{aligned}$$

Les valeurs des conductivités du nickel et du fer sont calculées en utilisant les mêmes valeurs que [63] ( $A_{Ni} = 10^{-13}$  erg,  $A_{Fe} = 0.7 * 10^{-13}$  erg et  $M_{Ni} = 500$  Gauss,  $M_{Fe} = 1700$  Gauss, (1 eV=1.6\*10<sup>-12</sup> erg)). Il obtient :

$$\sigma_1(Ni) \approx 5.2 * 10^{12} s^{-1} \quad \sigma_1(Fe) \approx 12.4 * 10^{12} s^{-1}.$$

La rotation Faraday est calculée dans le cas du fer est correspond à l'ordre de grandeur obtenu expérimentalement.

### Bennett et Stern 1965

Leur contribution *Faraday effect in solids* [66] est fréquemment mentionnée dans le domaine de la magnéto-optique. Ils décrivent l'effet Faraday de manière générale pour des métaux ferromagnétiques et non ferromagnétiques en présence d'un champ magnétique statique. Nous n'abordons pas ce travail dans les détails et on présente le résumé réalisé dans [36]. Ils associent la puissance cédée à la matière par le champ électromagnétique de pulsation  $\omega$  en terme d'effet Joule, à celle correspondant à l'absorption de  $N$  photons d'énergie  $\hbar\omega$ , lors de processus quantiques d'interaction rayonnement-matière entre deux états  $\alpha$  et  $\beta$  de probabilité  $W_{\beta\alpha}$  :

$$P = \frac{N}{2} Re[\mathbf{j} \cdot \mathbf{E}] = \frac{N}{2} Re \left[ \sum_{ij} \sigma_{ij} E_j E_i \right] = N\hbar\omega \sum_{\alpha \neq \beta} W_{\beta\alpha}.$$

L'hamiltonien du système est donné par (4.36) où  $\mathbf{A}_{mat}$  et  $V_{mat}$  représentent les potentiels vecteur et scalaire dans la matière,  $\mathbf{A}_L$  et  $V_L$  les potentiels vecteur et scalaire du champ électromagnétique et  $H_{int}$  le terme d'interaction rayonnement-matière :

$$H = \frac{(\mathbf{p} - (e/c)\mathbf{A}_{mat})^2}{2m} + V_{mat} + V_L + \frac{(\mathbf{p} - (e/c)\mathbf{A}_{mat})}{4m^2c^2} \cdot (\boldsymbol{\sigma} \wedge \nabla V_{mat} + \underbrace{\frac{e}{mc} \boldsymbol{\Pi} \cdot \mathbf{A}_L}_{H_{int}}), \quad (4.36)$$

avec  $\boldsymbol{\Pi}$  la quantité de mouvement corrigée tenant compte de l'interaction spin-orbite :

$$\boldsymbol{\Pi} = \mathbf{p} - (e/c)\mathbf{A}_{mat} + \frac{\hbar}{4m^2c^2} (\boldsymbol{\sigma} \wedge \nabla V_{mat}).$$

En introduisant la quantité  $\Pi_{\pm} = (\Pi_x \pm \Pi_y)$  ils évaluent la probabilité de transition  $W_{\beta\alpha}$  par unité de temps à l'aide de la règle d'or de Fermi :

$$W_{\beta\alpha} = \frac{2\pi EE^* e^2}{4m^2\omega^2} |\langle \beta | \Pi_{\pm} | \alpha \rangle|^2 [\delta(\hbar\omega_{\beta\alpha} - \hbar\omega) + \delta(\hbar\omega_{\beta\alpha} + \hbar\omega)],$$

qui permet d'obtenir les parties réelle et imaginaire de la conductivité en fonction de la contribution de l'interaction spin-orbite :

$$\begin{aligned} Re[\sigma_{xy}] &= \frac{N\pi e^2}{\hbar m^2} \sum_{\alpha \neq \beta} \left\{ \frac{|\langle \beta | \Pi_- | \alpha \rangle|^2}{(\omega_{\beta\alpha}^2 - \omega^2)} - \frac{|\langle \beta | \Pi_+ | \alpha \rangle|^2}{(\omega_{\beta\alpha}^2 - \omega^2)} \right\} \\ Im[\sigma_{xy}] &= \frac{N\pi e^2}{\hbar m^2} \sum_{\alpha \neq \beta} \delta(\omega_{\beta\alpha} - \omega) [|\langle \beta | \Pi_- | \alpha \rangle|^2 - |\langle \beta | \Pi_+ | \alpha \rangle|^2]. \end{aligned}$$

### 4.2.3 Résumé et discussion sur la source d'anisotropie

#### Rappel

Dans le modèle classique de Drude-Voigt présenté en section (4.2.1), l'anisotropie provient de la présence du champ magnétique. C'est la force de Lorentz magnétique qui dévie le mouvement des charges  $\mathbf{F}_m = -e\mathbf{v} \wedge \mathbf{B}$ . Pour les matériaux ferromagnétiques, le mécanisme reste valable mais le champ magnétique doit être de l'ordre de 1000 T pour obtenir des valeurs théoriques de rotation semblables aux valeurs expérimentales. Cette valeur s'accorde avec la valeur du champ moléculaire de Weiss. Dans le modèle en question, on considère des charges liées mais il est tout à fait possible d'obtenir des résultats similaires avec des charges libres. Il suffit de poser  $\omega_0 = 0$  dans l'équation (4.22) pour s'affranchir de la force de rappel de Hooke.

D'un point de vue de la mécanique quantique, il est établi que le moment orbital est bloqué dans les métaux de transition et que le champ moléculaire de Weiss n'affecte pas le mouvement des charges. La forte anisotropie magnéto-optique est attribuée au couplage spin-orbite afin de coupler les propriétés optiques liées aux charges aux propriétés magnétiques des spins. Nous avons présenté dans la section (4.2.2), trois méthodes différentes intégrant l'interaction spin-orbite pour obtenir une expression de la composante anisotrope du tenseur diélectrique. D'autres travaux plus récents confirment cette hypothèse [87].

#### Mais pourquoi ?

Cependant plusieurs points restent ambigus dans la description quantique du phénomène et ne semblent pas assez explicités. A savoir :

- L'idée que le champ magnétique effectif n'agit pas sur les charges n'est jamais correctement justifiée. Bennemann résume ceci dans un ouvrage récent [71] :

*Although Heisenberg exchange interaction correctly reveals the origin of magnetism as an effective magnetic field to align the individual spins, this field can not alone be used to explain the Faraday effect. **This is because it is not coupled to the electron motion**, which determines the optical properties of a material. This difficulties was solved in 1932 by Hulme who pointed out that this is the spin-orbit interaction that couples the electron spins to its motion to give rise to the large Faraday rotation in a ferromagnetic...Indeed to a certain extend, the spin-orbit interaction can be thought as an effective magnetic field vector potential  $\sim \mathbf{s} \wedge \nabla V$  acting on the motion of the electron*

Le blocage du moment orbital dans les ferromagnétiques semble en être la justification, mais cette hypothèse ouvre une autre problématique.

- Tout d'abord, comment le blocage du moment orbital permet-il l'existence de l'interaction spin-orbite ? Il n'est pas assez expliqué si c'est le couplage spin-orbite qui permet de "libérer" l'orbite et rendre possible le déplacement de la charge.
- Ensuite, si ce mécanisme rétablit le mouvement des charges, pourquoi ne pourraient-elles pas ressentir l'action du champ magnétique effectif ?
- Par ailleurs les ferromagnétiques présentent des propriétés métalliques, donc possèdent des charges libres, qui doivent être déviées par tout champ magnétique rencontré, quelque soit son origine.

### 4.3 Désaimantation ultra-rapide

« Magnetem ultra rapidum est ! »

Pline Lucien, -270 pendant JC

#### 4.3.1 Présentation

Nous avons vu dans la section précédente que les effets Kerr et Faraday permettent une mesure indirecte de l'aimantation d'un solide. Ces phénomènes observés dans le cadre de l'optique linéaire ne modifient pas l'aimantation du matériau. En utilisant des impulsions laser ultra-brèves et intenses (allant de la picoseconde à une dizaine de femto-secondes), il est possible d'atteindre des régimes de polarisation non-linéaire de la matière et de modifier l'organisation de l'aimantation dans un solide. Des montages de type pompe-sonde permettent de réaliser des expériences Kerr et Faraday résolues en temps, c'est-à-dire d'observer l'évolution temporelle de la rotation et de l'ellipticité. Ces mesures donnent accès à la dynamique d'aimantation induite par l'impulsion laser ultra-brève.

En 1996, J-Y Bigot et son équipe ont observé la désaimantation d'un film ferromagnétique de Ni par une impulsions laser de 60 fs [34]. On veut voir l'évolution de la rotation du plan de polarisation représentant l'aimantation au cours du temps (figure 4.2.a). Les travaux qui ont suivi, réalisés sur différents matériaux ferromagnétiques, ont confirmé la possibilité de modifier l'aimantation d'un système par une impulsion laser sur des échelles de temps inférieures à la picoseconde [39], [40], [41], [42], [44], [36], [48], [37], [50]). Par exemple, les cycles d'hystérésis obtenus sur des échantillons ferromagnétiques de  $\text{CoPt}_3$  (figure 4.2.b) sont une signature incontestable de la mesure d'aimantation par effet Kerr [35].

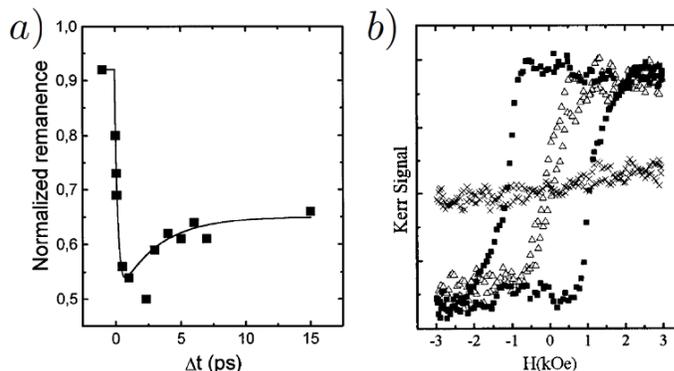


FIG. 4.2 – a) Désaimantation d'un échantillon de Nickel sur quelques ps [34] ; b) Cycles d'hystérésis sur du  $\text{CoPt}_3$  pour différents retards entre la pompe et la sonde [35].

Depuis, d'autres expériences ont pu mettre en évidence, la possibilité pour la lumière d'induire des réorientations et des mouvements de précession de l'aimantation ([43], [47], [38], [46]), mais également de modifier la structure magnétique d'un matériau ([45], [49]). Cette thématique constitue à présent le domaine du **fentomagnétisme** et fait l'objet d'intenses recherches depuis une quinzaine d'années. On trouvera dans [51] une description détaillée de ce champ de recherche.

Les impulsions laser ultra-brèves sont un outil performant pour étudier les phénomènes physiques

ayant lieu à des échelles de temps non accessibles par les mesures de spectroscopie statique. Les mesures de spectroscopie résolue en temps (section suivante) ont pu apporter des éléments de réponse sur les processus physiques impliquant les charges, les spins et le réseau. Entre l'instant où le système interagit avec le champ électromagnétique laser puis relaxe vers son état d'équilibre, il est généralement admis le scénario suivant :

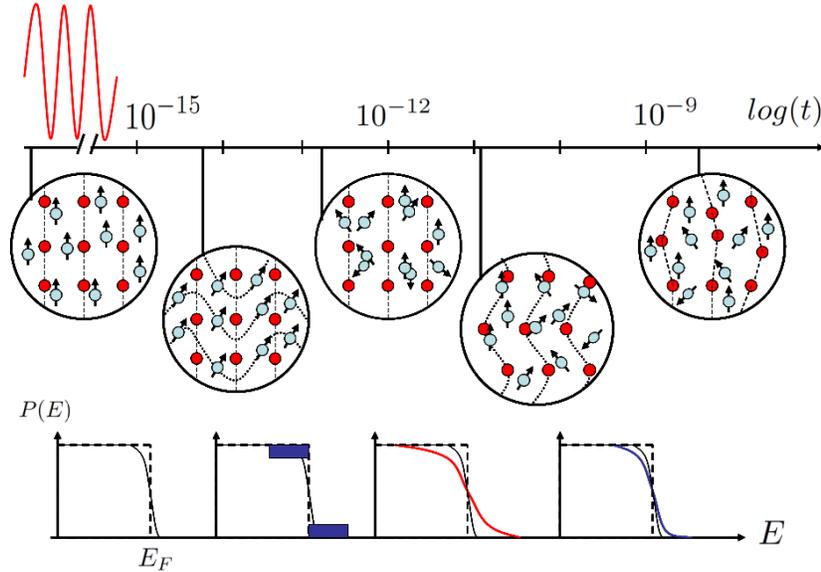


FIG. 4.3 – Scénario du transfert de l'énergie lumineuse entre les constituants du solide au cours du temps ; distributions de Fermi-Dirac illustrant les différentes phases de thermalisation.

### Thermalisation et transfert d'énergie

Les charges et les spins sont portés dans un état hors équilibre, où la température n'est pas définie. Il s'agit du régime athermal. Les charges oscillent de manière collective à la pulsation plasma du système, des paires électrons-trous sont créées. En une centaine de femtosecondes, le système thermalise par collisions des quasi-particules permettant de définir une distribution de Fermi-Dirac dite chaude. Les collisions avec les phonons participent aussi à la thermalisation. Les interactions diffusives entre électrons, spins et phonons ramènent en quelques picosecondes les électrons vers une distribution de Fermi-Dirac dite froide. L'énergie se dissipe ensuite en une centaine de picosecondes vers le réseau cristallin qui vibre tout d'abord de façon cohérente puis relaxe vers l'équilibre au delà d'une nanoseconde.

### Dynamique d'aimantation

Concernant la dynamique d'aimantation, la chute brutale après interaction avec l'impulsion lumineuse, se poursuit par un mouvement de précession autour du champ effectif dont la période dépend de l'anisotropie magnéto-cristalline. On observe ensuite un mouvement d'amortissement due aux interactions des spins avec le réseau. Ce comportement de retour à l'équilibre a été étudié. En revanche, l'origine de la perte d'aimantation n'a pas trouvé, à l'heure actuelle, une explication satisfaisant l'ensemble de la communauté scientifique. Plusieurs hypothèses et pistes sont proposées : importance des phonons pour le retournement de spin, variation de l'anisotropie magnéto-cristalline, modification du

champ d'échange, couplage cohérent entre les spins et le champ...

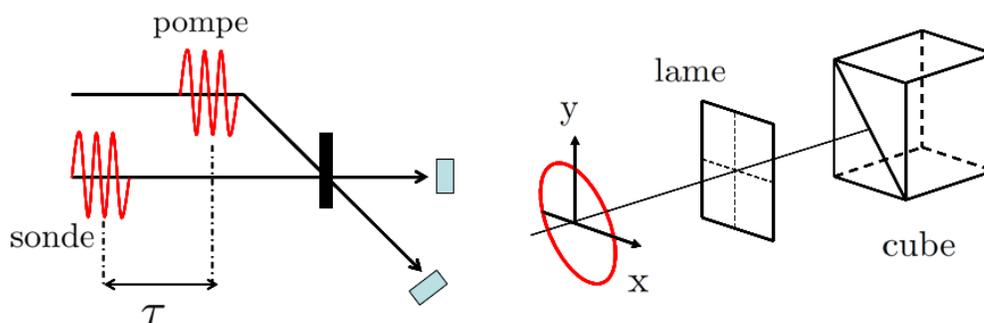
Ce qui nous intéresse ici est la distinction entre les **phénomènes cohérents**, se manifestant en présence du champ électromagnétique, **et les phénomènes incohérents** ayant lieu après l'interaction. Les effets cohérents sont en phase avec l'impulsion excitatrice alors que les effets incohérents ont perdu toute mémoire relative au champ. Ainsi, la dynamique d'aimantation mesurée sur les temps de la picoseconde à la nanoseconde est incohérente comparée à la durée de l'impulsion laser qui est de quelques dizaines ou d'une centaine de femtosecondes. La dynamique cohérente des charges existe et peut être mesurée mais la question concernant une dynamique cohérente de l'aimantation reste posée. A ce sujet J.-Y. Bigot, M. Vomir et E. Beaurepaire ont proposé une technique expérimentale mettant en évidence un signal magnéto-optique cohérent [8]. Cette expérience fera l'objet de la section (4.3.4).

### 4.3.2 Effet Kerr et Faraday résolus en temps

La spectroscopie résolue en temps repose sur les expériences de type **pompe-sonde** qui font intervenir deux impulsions laser. Une première impulsion dite de pompe perturbe le système et le porte dans un état hors équilibre, tandis qu'une deuxième impulsion moins intense dite de sonde, retardée par rapport à la première, "analyse l'état" de cette perturbation. En mesurant la grandeur physique d'intérêt en fonction du retard entre la pompe et la sonde, on reconstitue l'évolution du système de l'état perturbé vers l'état d'équilibre. On effectue une mesure différentielle normalisée des intensités de la pompe  $I_P$  et de la sonde  $I_S$  en fonction du délai temporel  $\tau$  entre les deux signaux :

$$S(\tau) = \frac{I_P - I_S(\tau)}{I_S(\tau)}. \quad (4.37)$$

Pour étudier l'évolution temporelle des paramètres magnéto-optiques, il faut pouvoir extraire la rotation et l'ellipticité de l'intensité détectée. Cette mesure **ellipsométrique** est réalisée à l'aide d'une lame d'onde et d'un cube polarisateur placés en sortie de l'échantillon. Le cube polarisateur permet de mesurer les composantes orthogonales du champ électrique.



Pour des valeurs faibles d'angles de rotation et d'ellipticité, on peut montrer que la différence d'intensité entre les composantes orthogonales du champ est proportionnelle aux paramètres magnéto-optique. On détermine alors la différence d'intensité  $\Delta I = I_x - I_y$ .

#### Mesure expérimentale de la rotation et de l'ellipticité

La mesure de la rotation s'effectue avec une lame demi-onde ( $\lambda/2$ ) orientée à  $\pi/8$  [52], et la me-

sure de l'ellipticité avec une lame quart-d'onde ( $\lambda/4$ ) orientée à  $\pi/4$ . On notera :

$$\Delta I_\theta = (I_x - I_y)_{\lambda/2} \quad (4.38)$$

$$\Delta I_\eta = (I_x - I_y)_{\lambda/4}. \quad (4.39)$$

A l'aide des matrices de Jones (section 4.2.2) on peut déterminer l'évolution des composantes du signal à travers le dispositif de mesure et déterminer l'intensité des composantes  $I_x$  et  $I_y$ . Après interaction avec l'échantillon, le signal lumineux (de pompe ou de sonde) est caractérisé par l'état elliptique :

$$\mathbf{V}(\chi, \eta) = \begin{bmatrix} \cos(\chi)e^{-i\phi/2} \\ \sin(\chi)e^{i\phi/2} \end{bmatrix}.$$

Les matrices de Jones associées à la lame demi-onde (à  $\pi/8$ ) et à la lame quart-d'onde (à  $\pi/4$ ) sont notées respectivement  $M_{\lambda/2}$  et  $M_{\lambda/4}$ , les matrices représentant la mesure de la polarisation des composantes selon les axes  $x$  et  $y$  sont notées  $P_x$  et  $P_y$  [54] (en tenant compte de la normalisation) :

$$M_{\lambda/2} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ 1 & -1 \end{bmatrix}; \quad M_{\lambda/4} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 & i \\ i & 1 \end{bmatrix}; \quad P_x = \begin{bmatrix} 1/\sqrt{2} & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix}; \quad P_y = \begin{bmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1/\sqrt{2} \end{bmatrix}.$$

Ainsi lors de la **mesure d'une rotation**  $\theta$ , les composantes du champ électrique s'écrivent après la traversée du dispositif de mesure :

$$\begin{aligned} E_x &= P_x M_{\lambda/2} \mathbf{V}(\chi, \eta) \begin{bmatrix} E_{x0} \\ E_{y0} \end{bmatrix} \\ E_y &= P_y M_{\lambda/2} \mathbf{V}(\chi, \eta) \begin{bmatrix} E_{x0} \\ E_{y0} \end{bmatrix}. \end{aligned}$$

Les expressions sont développées à l'aide des matrices de Jones :

$$\begin{aligned} E_x &= \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix} \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ 1 & -1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \cos(\chi)e^{-i\phi/2} \\ \sin(\chi)e^{i\phi/2} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_{0x} \\ E_{0y} \end{bmatrix} \\ &= \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \cos(\chi)e^{-i\phi/2} \\ \sin(\chi)e^{i\phi/2} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_{0x} \\ E_{0y} \end{bmatrix} \\ &= \frac{1}{2} \left( E_{0x} \cos(\chi) e^{-i\phi/2} + E_{0y} \sin(\chi) e^{i\phi/2} \right) \\ E_y &= \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ 1 & -1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \cos(\chi)e^{-i\phi/2} \\ \sin(\chi)e^{i\phi/2} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_{0x} \\ E_{0y} \end{bmatrix} \\ &= \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 0 & 0 \\ 1 & -1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \cos(\chi)e^{-i\phi/2} \\ \sin(\chi)e^{i\phi/2} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_{0x} \\ E_{0y} \end{bmatrix} \\ &= \frac{1}{2} \left( E_{0x} \cos(\chi) e^{-i\phi/2} - E_{0y} \sin(\chi) e^{i\phi/2} \right). \end{aligned}$$

On en déduit l'intensité mesurée à l'aide du produit par le complexe conjugué dans le cas idéal d'une onde plane :

$$\begin{aligned} I_x = E_x^* E_x &= \frac{1}{4} \left( E_{0x} \cos(\chi) e^{i\phi/2} + E_{0y} \sin(\chi) e^{-i\phi/2} \right) \left( E_{0x} \cos(\chi) e^{-i\phi/2} + E_{0y} \sin(\chi) e^{i\phi/2} \right) \\ &= \frac{I_0}{4} \left( \cos^2(\chi) + \sin^2(\chi) + 2\cos(\chi)\sin(\chi)\cos\phi \right) \\ I_y = E_y^* E_y &= \frac{1}{4} \left( E_{0x} \cos(\chi) e^{i\phi/2} - E_{0y} \sin(\chi) e^{-i\phi/2} \right) \left( E_{0x} \cos(\chi) e^{-i\phi/2} - E_{0y} \sin(\chi) e^{i\phi/2} \right) \\ &= \frac{I_0}{4} \left( \cos^2(\chi) + \sin^2(\chi) - 2\cos(\chi)\sin(\chi)\cos\phi \right). \end{aligned}$$

L'intensité mesurée lors d'une mesure de rotation  $\theta$  s'écrit :

$$\Delta I_\theta = I_x - I_y = I_0 \cos(\chi) \sin(\chi) \cos(\phi). \quad (4.40)$$

Pour la **mesure de l'ellipticité**  $\eta$ , les calculs sont identiques à condition d'utiliser la matrice de Jones  $M_{\lambda/4}$ . On obtient :

$$\Delta I_\eta = I_x - I_y = I_0 \cos(\chi) \sin(\chi) \sin(\phi). \quad (4.41)$$

On peut simplifier les expressions précédentes pour des faibles valeurs de  $\chi$  et  $\phi$ , et les transformer à l'aide des propriétés géométriques de l'ellipse présentées en section (4.1.2) :

$$\begin{cases} \cos(\chi) \approx 1 \\ \sin(2\chi) \approx 2\sin(\chi) \end{cases} \quad \begin{cases} \sin(2\eta) = \sin(2\chi) \sin(\phi) \\ \tan(2\eta) = \tan(\phi) \sin(2\theta). \end{cases}$$

Les formules (4.40) et (4.41) deviennent :

$$\begin{aligned} \Delta I_\theta = I_0 \cos(\chi) \sin(\chi) \cos(\phi) &\approx \frac{I_0}{2} \sin(2\chi) \cos(\phi) \approx \frac{I_0}{2} \sin(2\chi) \frac{\sin(\phi)}{\tan(\phi)} \\ &\approx \frac{I_0}{2} \sin(2\eta) \frac{\sin(2\theta)}{\tan(2\eta)} \approx \frac{I_0}{2} \sin(2\theta) \cos(2\eta) \\ &\approx I_0 \theta \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \Delta I_\eta = I_0 \cos(\chi) \sin(\chi) \sin(\phi) &\approx \frac{I_0}{2} \sin(2\chi) \sin(\phi) \approx \frac{I_0}{2} \sin(2\eta) \\ &\approx I_0 \eta. \end{aligned}$$

On retiendra que le dispositif expérimental permet bien de mesurer la rotation et l'ellipticité pour de faibles valeurs d'angles :

$$\frac{\Delta I_\theta}{I_0} = \left[ \frac{I_x - I_y}{I_0} \right]_{\lambda/2} = \cos(\chi) \sin(\chi) \cos(\phi) \approx \theta \quad (4.42)$$

$$\frac{\Delta I_\eta}{I_0} = \left[ \frac{I_x - I_y}{I_0} \right]_{\lambda/4} = \cos(\chi) \sin(\chi) \sin(\phi) \approx \eta. \quad (4.43)$$

Remarques :

- Il faut préciser que les calculs d'intensités précédents sont réalisés pour un champ électrique décrit par une onde plane. Les différences d'intensités ne sont pas tout à fait proportionnelles aux grandeurs magnéto-optiques. Il faut revenir à la définition de l'intensité qui est une moyenne temporelle sur la période du détecteur  $T_d$  :

$$I = \frac{1}{T_d} \int_0^{T_d} dt |E^* E|$$

- Le champ électromagnétique du laser a un profil gaussien.

### Signal magnéto-optique résolu en temps

A l'aide de la formule (4.37) et de la façon dont on mesure les grandeurs magnéto-optiques (4.42) et (4.43), les signaux pompe-sonde représentant l'évolution temporelle de la rotation et de l'ellipticité

s'écrivent :

$$S_{\theta}(\tau) = \left[ \frac{\frac{\Delta I_P}{I_P} - \frac{\Delta I_S(\tau)}{I_S}}{\frac{\Delta I_S(\tau)}{I_S}} \right]_{\lambda/2} = \frac{\Delta \theta}{\theta}(\tau) = \frac{\theta_P - \theta_S(\tau)}{\theta_S(\tau)} \quad (4.44)$$

$$S_{\eta}(\tau) = \left[ \frac{\frac{\Delta I_P}{I_P} - \frac{\Delta I_S(\tau)}{I_S}}{\frac{\Delta I_S(\tau)}{I_S}} \right]_{\lambda/4} = \frac{\Delta \eta}{\eta}(\tau) = \frac{\eta_P - \eta_S(\tau)}{\eta_S(\tau)}. \quad (4.45)$$

Expérimentalement les grandeurs magnéto-optiques sont mesurées en réalisant la demi-différence des signaux précédents par rapport au champ magnétique  $\pm H$  :

$$S_{\theta}^{MO}(\tau) = \frac{1}{2} \left( \left( \frac{\Delta \theta}{\theta}(\tau) \right)_{+H} - \left( \frac{\Delta \theta}{\theta}(\tau) \right)_{-H} \right) \quad (4.46)$$

$$S_{\eta}^{MO}(\tau) = \frac{1}{2} \left( \left( \frac{\Delta \eta}{\eta}(\tau) \right)_{+H} - \left( \frac{\Delta \eta}{\eta}(\tau) \right)_{-H} \right). \quad (4.47)$$

où  $\pm H$  représente la direction du champ externe appliqué par rapport à l'axe définissant la normale à l'échantillon. Cette précaution permet de s'affranchir de la réponse optique des charges et de recueillir uniquement la partie magnétique de la réponse.

La forte intensité du laser de pompe induit des perturbations non linéaires du troisième ordre en champ électrique tandis que l'intensité plus faible du laser de sonde reste dans la "gamme" de l'optique linéaire. On peut écrire :

$$\begin{aligned} \theta_P &= \theta_P^{(3)} + \theta_P^{(1)}, & \theta_S &= \theta_S^{(1)}, \\ \eta_P &= \eta_P^{(3)} + \eta_P^{(1)}, & \eta_S &= \eta_S^{(1)}. \end{aligned}$$

Les angles de rotation  $\theta_P^{(1)}$  et  $\theta_S^{(1)}$  ainsi que les angles d'ellipticité  $\eta_P^{(1)}$  et  $\eta_S^{(1)}$  sont du même ordre de grandeur. Le signal magnéto-optique décrit alors l'évolution des perturbations du troisième ordre  $\theta_P^{(3)}$  et  $\eta_P^{(3)}$  relaxant vers l'état d'équilibre. Les angles de rotation et d'ellipticité mesurés sont des grandeurs de magnéto-optique non-linéaire.

### 4.3.3 Magnéto-optique non linéaire

Elle traite des propriétés optiques et magnétiques des matériaux induites par la polarisation non-linéaire des charges. En présence d'un fort champ électrique, la polarisation diélectrique n'est plus proportionnelle au champ exciteur :

$$\begin{aligned} \mathbf{P} &= \mathbf{P}^L + \mathbf{P}^{NL} \\ &= \epsilon_0 \chi \mathbf{E} + \epsilon_0 \chi^2 \mathbf{E}^2 + \epsilon_0 \chi^3 \mathbf{E}^3. \end{aligned}$$

Ces effets se répercutent évidemment dans la matière. Dans le cadre d'une expérience de Faraday l'angle de rotation subit les effets de la non-linéarité (voir figure 4.4).

Dans les milieux centro-symétriques on peut négliger la polarisation du second ordre, on réécrit les expressions des grandeurs magnéto-optiques :

$$\begin{aligned} \theta &= \theta^{NL} + \theta^L = \theta^{(3)} + \theta^{(3)MO} + \theta^{(1)} \\ \eta &= \theta^{NL} + \theta^L = \eta^{(3)} + \eta^{(3)MO} + \eta^{(1)}, \end{aligned}$$

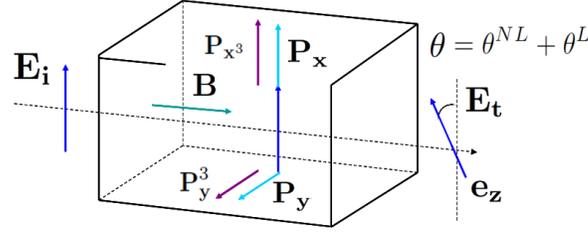


FIG. 4.4 – Effet Faraday non-linéaire.

dans lesquelles il faut préciser l'impact de la non-linéarité. L'indice (1) correspond à la partie linéaire ( $\theta^{(1)} = \theta^{(L)}$ ) elle représente une **mesure statique de l'aimantation**. La partie non linéaire doit alors être décomposée en deux contributions, une avec l'indice (3) représentant la mesure statique de l'aimantation via la polarisation du troisième ordre et la seconde avec l'indice (3)MO représentant la modification de l'aimantation. L'équation de Maxwell-Ampère est modifiée selon :

$$\begin{aligned}\nabla \wedge \mathbf{B} &= \mu_0 \left( \epsilon_0 \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} \right) + \mu_0 \frac{\partial \mathbf{P}^{(3)}}{\partial t} + \mu_0 \nabla \wedge (\mathbf{M} + \mathbf{M}^{NL}) \\ &= \mu_0 [\epsilon] \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \mu_0 \frac{\partial \mathbf{P}^{(3)}}{\partial t} + \mu_0 \nabla \wedge (\mathbf{M} + \mathbf{M}^{NL}).\end{aligned}$$

Le courant d'aimantation  $\nabla \wedge \mathbf{M}$  représente l'aimantation statique, il ne pose pas de problème car il peut toujours être "caché" dans  $\mathbf{M}$  selon  $\mathbf{H} = \frac{\mathbf{B}}{\mu_0} - \mathbf{M}$ . En revanche la contribution  $\mathbf{M}^{NL}$  est difficile à traiter car elle est induite par le champ électromagnétique :  $\mathbf{M}^{NL}(E)$ . L'indice  $NL$  ne sous entend pas nécessairement un développement du type :

$$\mathbf{M} = \frac{\chi_m}{\mu_0} \mathbf{H} + \frac{\chi_m^{(2)}}{\mu_0} \mathbf{H}^2 + \dots,$$

qui n'est pas à exclure, mais fait plutôt référence à la participation du champ électrique dans la fonction de réponse magnétique :

$$\mathbf{M} = \frac{\chi_m(E, E^2)}{\mu_0} \mathbf{H}.$$

Des théories pointues de magnéto-optique non-linéaire ont été développées mais nous ne les précisons pas. On peut mentionner :

- Une approche de l'effet Kerr non linéaire explicitant l'aimantation induite par la polarisation des charges au deuxième ordre  $\mathbf{P}^2 = \epsilon_0 \chi^2 \mathbf{E}^2$ . Elle permet de calculer des fonctions de réponse du type  $\chi^2(M)$ . On pourra trouver les détails dans *Non linear Optics in Metals* [71].
- Une approche impressionnante de la modification des paramètres magnéto-optiques  $\theta$  et  $\eta$  dans les milieux non linéaires basée sur l'évolution des paramètres de Stockes. L'ouvrage s'intitule *Polarization in Nonlinear Optics* [53].

#### 4.3.4 Magnéto-optique cohérente

La magnéto-optique cohérente traite de l'interaction cohérente des charges et des spins avec l'onde électromagnétique du faisceau laser. Les expériences menées dans [8] sur des films ferromagnétiques de Ni et de CoPt<sub>3</sub> apportent des éléments de réflexions intéressants sur les mécanismes physiques ayant lieu dans les premiers instants du processus d'interaction rayonnement-matière. On présente ici

quelques points importants.

Tout d'abord, une expérience simple d'**effet Faraday** est présentée, utilisant **uniquement l'impulsion laser de pompe**, et ceci sur plusieurs gammes d'intensité lumineuse. On peut voir sur la figure ci-dessous, l'évolution des grandeurs magnéto-optique  $\theta$  et  $\eta$  en fonction de l'énergie absorbée par le système suite à sa perturbation par le champ du laser :

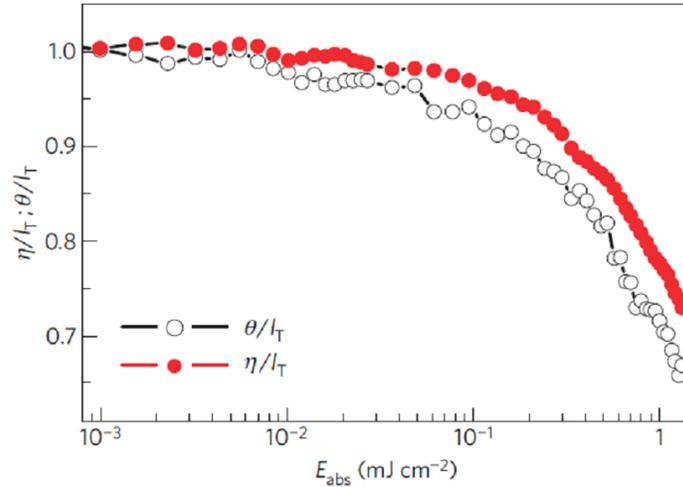


FIG. 4.5 – Rotation et ellipticité normalisées en fonction de l'énergie absorbée par le film de Nickel [8].

Partant de l'idée que la source d'anisotropie dans les ferromagnétiques est due à l'interaction spin-orbite, la dépendance non linéaire du signal magnéto-optique avec l'impulsion excitatrice peut être attribuée à une interaction de même nature mais impliquant le champ électrique du laser. Pour décrire la dynamique électronique, les auteurs de [8] proposent le hamiltonien "relativiste" :

$$\begin{aligned}
 H = & mc^2 + e\Phi + \frac{(\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2}{2m} - \frac{e\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B} - \frac{e\hbar^2}{8m^2c^2} \nabla \cdot \mathbf{E} \\
 & - \frac{1}{2mc^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A})) - \frac{i}{4mc^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla \wedge \mathbf{E}), \quad (4.48)
 \end{aligned}$$

obtenu par la transformation de Foldy-Wouthuysen du hamiltonien de Dirac. Le couplage spin-orbite implique généralement le champ cristallin du réseau  $\mathbf{E} = -\nabla V_{mat}$ . Il pourrait être étendu au champ électromagnétique du laser dépendant du temps  $\mathbf{E}(t)$ .

Une seconde expérience, résolue en temps, y est réalisée, dans laquelle les auteurs ont éliminé la mesure des effets incohérents, et séparé la réponse optique des charges de la réponse magnéto-optique des spins. La séparation entre signal optique et signal magnéto-optique est effectuée par la différenciation du signal par rapport à  $\pm H$ . Les effets incohérents n'étant pas sensibles à la polarisation du champ, le signal cohérent est obtenu en tenant compte de la polarisation relative entre la pompe et la sonde. On réalise une différenciation entre la mesure où pompe et sonde sont polarisées perpendiculairement

(90°) l'une par rapport à l'autre, de celle où pompe et sonde sont polarisées parallèlement (0°) :

$$\begin{aligned} \left(\frac{\Delta\theta}{\theta}\right)_O &= \left[ \left(\frac{\Delta\theta}{\theta}\right)_{+H} + \left(\frac{\Delta\theta}{\theta}\right)_{-H} \right]_{0^\circ} - \left[ \left(\frac{\Delta\theta}{\theta}\right)_{+H} + \left(\frac{\Delta\theta}{\theta}\right)_{-H} \right]_{90^\circ} \\ \left(\frac{\Delta\theta}{\theta}\right)_{MO} &= \left[ \left(\frac{\Delta\theta}{\theta}\right)_{+H} - \left(\frac{\Delta\theta}{\theta}\right)_{-H} \right]_{0^\circ} - \left[ \left(\frac{\Delta\theta}{\theta}\right)_{+H} - \left(\frac{\Delta\theta}{\theta}\right)_{-H} \right]_{90^\circ}. \end{aligned}$$

Cette différence se répercute bien dans les mesures expérimentales. On peut extraire alors un signal de réponse magnétique en cohérence temporelle avec l'impulsion laser excitatrice (48 fs). Le signal magnétique semble bien avoir été, dans cette expérience, séparé de la réponse cohérente des charges.

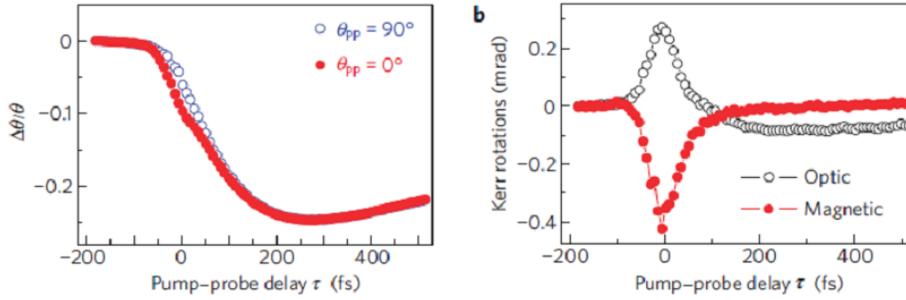


FIG. 4.6 – Signaux cohérents (échantillon de Nickel) [8].

Les mesures suggèrent donc une modification de l'état magnétique du matériau en phase avec l'impulsion laser. Il s'agirait d'un processus d'ordre électromagnétique induit par les champs électromagnétiques du laser, et non pas d'un processus de désordre thermique provenant de l'énergie déposée par l'impulsion. C'est un résultat nouveau concernant le phénomène de désaimantation ultra-rapide aux temps courts. Les auteurs ont proposé que l'origine microscopique de ce phénomène cohérent provienne de l'interaction relativiste entre les spins et le champ électromagnétique du laser à travers les éléments de couplage :

$$\sigma H^{FW} = -\frac{e\hbar}{2m}\sigma \cdot \left( \mathbf{B} - \frac{1}{2mc^2}\sigma \cdot (\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A})) - \frac{i}{4mc^2}\sigma \cdot (\nabla \wedge \mathbf{E}) \right). \quad (4.49)$$

Des travaux récents [52] ont modélisé une expérience de magnéto-optique impliquant les effets relativistes sur un système modèle d'atome d'hydrogène. Les résultats numériques montrent que les corrections relativistes produisent bien un signal magnéto-optique cohérent.

La première expérience constitue une excellente approche pour étudier la réponse magnéto-optique non-linéaire d'un matériau ferromagnétique. On présentera dans le prochain chapitre une approche basée sur l'indice optique non linéaire du matériau et on tentera de modéliser l'expérience réalisée. La seconde expérience impliquant une désaimantation cohérente des systèmes ferromagnétiques ouvre la voie vers une thématique difficile et complexe. Nous en dirons quelques mots dans le dernier chapitre.

## Chapitre 5

# Essais en magnéto-optique non linéaire

Le cinquième chapitre est consacré à la construction d'un modèle pour décrire les phénomènes magnéto-optiques non-linéaires. Les théories classiques abordées dans le quatrième chapitre sont étendues aux régimes non-linéaires. On utilise les résultats obtenus pour modéliser la première expérience de [8] décrite en section (4.3.4). Dans la section (5.1) on présente les arguments qui nous amènent à envisager la réponse magnéto-optique non-linéaire en terme de différence de marche impliquant des indices optiques non-linéaires pour les modes circulaires ( $\pm$ ). Dans les sections (5.2) et (5.3) on s'inspire des théories classiques présentées dans les sections (4.1.3) et (4.2.1) pour construire une formule mathématique décrivant **l'indice optique d'un milieu non-linéaire et anisotrope**. Cette formule peut être **complétée** en utilisant les résultats du troisième chapitre pour inclure de **façon macroscopique l'interaction spin-orbite**. Ces deux expressions sont utilisées en section (5.4) pour modéliser une expérience Faraday non-linéaire réalisée sur un échantillon ferromagnétique de nickel [8]. La description de la matière est réalisée à l'aide de modèles classiques. Les propriétés électroniques du nickel sont décrites à l'aide des éléments de tenseur déterminés par le modèle de Drude-Voigt, tandis que les propriétés magnétiques sont évaluées de façon phénoménologique à l'aide du champ moléculaire de Weiss. Dans la section (5.5), on compare les prédictions théoriques obtenues aux résultats expérimentaux pour les deux formules mathématiques déterminées dans la section (5.3). Pour finir, on analyse la pertinence du modèle proposé tout en dégageant ses limites et insuffisances.

### 5.1 Point de départ

S. C. U. D (II)

Ce chapitre ne concerne que le mode  $\omega$ . Les autres attendront.

En magnéto-optique statique, les mesures des angles de rotation  $\theta$  ou d'ellipticité  $\eta$  sont proportionnelles au champ magnétique "présent" dans l'échantillon. L'expérience en **faisceau unique** réalisée dans [8] est une expérience **d'effet Faraday**, impliquant différentes énergies absorbées par l'échantillon et ainsi reliées à différentes amplitudes du champ électrique excitateur. On rappelle sur la figure 5.1 l'allure des paramètres magnéto-optiques, normalisés à leur valeur à basse intensité, en fonction de l'énergie absorbée par le système.

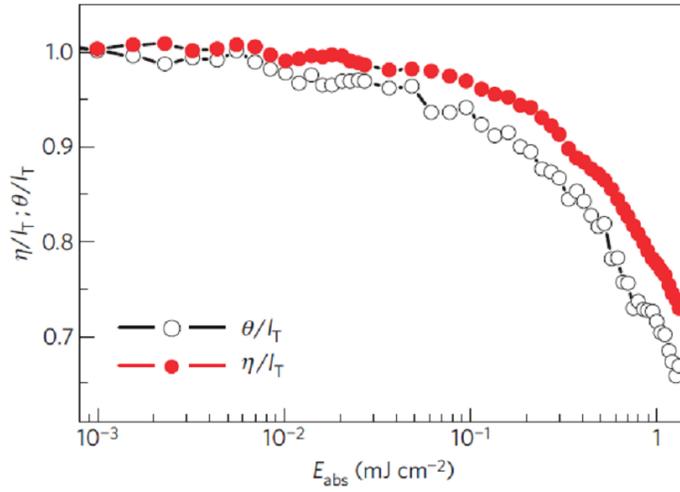


FIG. 5.1 – Dépendance non linéaire des paramètres magnéto-optiques normalisés avec l'énergie du champ laser absorbée par l'échantillon de Nickel.

Le point important est cette dépendance non linéaire avec l'impulsion excitatrice qui peut avoir deux origines :

- l'anisotropie de la **réponse non-linéaire des charges** due à la polarisation au troisième ordre.
- la **variation de l'aimantation** induite par l'impulsion laser dans le régime non-linéaire.

Il est difficile de distinguer quelle est la part respective de l'un ou de l'autre dans la diminution des paramètres magnéto-optiques. Dans **les deux cas le régime non-linéaire est nécessaire** pour obtenir un tel effet. L'idée de départ réside dans le fait que l'expression de la phase Faraday donnée en section (4.1.4) :

$$\Phi_F \approx \frac{\epsilon_{xy}}{\sqrt{\epsilon_{xx}}}, \quad (5.1)$$

ne peut pas décrire le phénomène observé. Elle ne **contient pas explicitement de dépendance avec le champ électrique**. Comme nous l'avons montré en section (4.1.3) l'expression (5.1) provient de la différence de phase entre les modes (+) et (-) des indices optiques :

$$n_{\pm}^2 = \epsilon_{xx} \pm i\epsilon_{xy}. \quad (5.2)$$

L'expression de ces indices n'est donc plus valable dans les régimes d'optique non-linéaire, il faut tenir compte de la polarisation non-linéaire au troisième ordre du type :

$$\mathbf{P} = \mathbf{P}^{(1)} + \mathbf{P}^{(3)} = \epsilon_0[\chi^{(1)}]\mathbf{E} + \epsilon_0[\chi^{(3)}]\mathbf{E}^3.$$

L'idée est de **construire** des indices optiques qui puissent inclure les fonctions de réponse du troisième ordre ainsi qu'une dépendance non-linéaire avec le champ électrique :

$$n_{NL}^2 = f(\epsilon_{xx}, \epsilon_{xy}, \chi^3, E, E^2). \quad (5.3)$$

Pour obtenir une telle expression on se base sur les deux considérations suivantes :

- Le modèle de Voigt permet à l'aide d'une théorie classique simple de construire les éléments isotrope  $\epsilon_{xx}$  et anisotrope  $\epsilon_{xy}$  du tenseur de susceptibilité. En incorporant dans ce modèle l'aspect non-linéaire de la réponse optique il est possible d'obtenir des expressions analytiques des éléments isotrope et anisotrope de la fonction de réponse du troisième ordre notés respectivement  $\epsilon_{xxxx}$  et  $\epsilon_{xxxy}$ . La polarisation  $\mathbf{P}^{(3)}$  prend la forme :

$$\mathbf{P}^{(3)} = \epsilon_0 \begin{bmatrix} \epsilon_{xxxx}(E_x^2 + E_y^2) & \epsilon_{xxxy}(E_x^2 + E_y^2) & 0 \\ -\epsilon_{xxxy}(E_x^2 + E_y^2) & \epsilon_{xxxx}(E_x^2 + E_y^2) & 0 \\ 0 & 0 & X \end{bmatrix} \mathbf{E}. \quad (5.4)$$

Ce travail est réalisé dans la section (5.2).

- L'expression des indices optiques (5.2) est obtenue à partir des équations de Maxwell (section 4.1.3). En incorporant le courant de polarisation des charges au troisième ordre sous la forme tensorielle (5.4) nous avons montré que la formule (5.3) pouvait s'écrire :

$$n_{\pm}^2 \approx \epsilon_{xx} + 2\epsilon_{xxxx}E^2 \pm i(\epsilon_{xy}^2 - 4\epsilon_{xxxy}^2E^4)^{1/2}. \quad (5.5)$$

La démonstration de cette formule est l'objet de la section (5.3.1).

## 5.2 Modèle de Voigt non-linéaire

Ce développement est une combinaison entre le modèle de Voigt [57] et le modèle anharmonique de l'électron élastiquement lié ([91], [92]). On considère  $N$  oscillateurs anharmoniques indépendants ayant pour énergie potentielle :

$$E_p = \frac{m\omega_0^2}{2}r^2 - \frac{mb}{4}r^4.$$

La force  $\mathbf{F} = -\nabla E_p$  brise la linéarité de l'équation différentielle du mouvement de l'oscillateur harmonique anisotrope qui prend la forme suivante :

$$\ddot{\mathbf{r}} + \frac{1}{\tau}\dot{\mathbf{r}} + \omega_0^2\mathbf{r} = b\mathbf{r}^3 - \frac{e}{m}(\mathbf{E} + \dot{\mathbf{r}} \wedge \mathbf{B}).$$

Cette équation non-linéaire peut se résoudre approximativement en développant le déplacement de la charge électronique  $\mathbf{r}(t)$  selon :

$$\mathbf{r}(t) = \mathbf{r}^{(1)}(t) + \mathbf{r}^{(3)}(t),$$

où  $\mathbf{r}^{(1)} = (\Delta x \mathbf{e}_x + \Delta y \mathbf{e}_y)$  le déplacement de l'électron induit par le champ électrique et  $\mathbf{r}^{(3)}(t) = \Delta x^{(3)} \mathbf{e}_x + \Delta y^{(3)} \mathbf{e}_y$  le déplacement induit par la contribution non-linéaire du troisième ordre. Les quantités  $\mathbf{r}^{(1)}(t)$  et  $\mathbf{r}^{(3)}(t)$  sont respectivement solutions des équations :

$$\ddot{\mathbf{r}}^{(1)} + \frac{1}{\tau}\dot{\mathbf{r}}^{(1)} + \omega_0^2\mathbf{r}^{(1)} = -\frac{e}{m}(\mathbf{E} + \dot{\mathbf{r}}^{(1)} \wedge \mathbf{B}), \quad (5.6)$$

$$\ddot{\mathbf{r}}^{(3)} + \frac{1}{\tau}\dot{\mathbf{r}}^{(3)} + \omega_0^2\mathbf{r}^{(3)} = b[\mathbf{r}^{(1)}]^3 - \frac{e}{m}\dot{\mathbf{r}}^{(3)} \wedge \mathbf{B}, \quad (5.7)$$

et  $\mathbf{r}^{(1)}(t)$  est la solution obtenue dans le cas linéaire développé en section (4.2.1), dont l'équation d'évolution (5.6) permet de calculer la polarisation au premier ordre. On s'intéresse alors uniquement à l'équation (5.7) où la contribution non-linéaire apparaît en terme source :  $b[\mathbf{r}^{(1)}]^3$ . Cette dernière expression dépend de la solution du premier ordre qui, compte tenu de la nature sinusoïdale du champ exciteur, s'écrit :

$$\mathbf{r}^{(1)}(t) = \mathbf{r}_{\omega}^{(1)}e^{i\omega t} + \mathbf{r}_{-\omega}^{(1)}e^{-i\omega t}.$$

Ainsi le terme source s'écrit :

$$\begin{aligned} b[\mathbf{r}^{(1)}]^3 &= b \left[ \mathbf{r}_\omega^{(1)} e^{i\omega t} + \mathbf{r}_{-\omega}^{(1)} e^{-i\omega t} \right]^3 \\ &= b \left[ \left( \mathbf{r}_\omega^{(1)} \right)^3 e^{3i\omega t} + 3 \left( \mathbf{r}_\omega^{(1)} \right)^2 \left( \mathbf{r}_{-\omega}^{(1)} \right) e^{i\omega t} + 3 \left( \mathbf{r}_\omega^{(1)} \right) \left( \mathbf{r}_{-\omega}^{(1)} \right)^2 e^{-i\omega t} + \left( \mathbf{r}_{-\omega}^{(1)} \right)^3 e^{-3i\omega t} \right]. \end{aligned}$$

Il est composé de quatre modes différents vibrant aux pulsations  $3\omega$ ,  $-3\omega$ ,  $\omega$  et  $-\omega$  impliquant quatre modes vibrationnels pour  $\mathbf{r}^{(3)}(t)$  :

$$\mathbf{r}^{(3)}(t) = \mathbf{r}_{3\omega}^{(3)} e^{3i\omega t} + \mathbf{r}_\omega^{(3)} e^{i\omega t} + \mathbf{r}_{-\omega}^{(3)} e^{-i\omega t} + \mathbf{r}_{-3\omega}^{(3)} e^{-3i\omega t}.$$

On propose ici de **résoudre l'équation pour le mode  $\omega$**  :  $\mathbf{r}_\omega^{(3)} = 3 \left( \mathbf{r}_\omega^{(1)} \right)^2 \left( \mathbf{r}_{-\omega}^{(1)} \right)$ . Pour simplifier les calculs on choisit de prendre les expressions  $\mathbf{r}_{(\pm\omega)}^{(1)} = \frac{-e\mathbf{E}}{mD(\pm\omega)}$  obtenues dans le cas isotrope. L'équation différentielle de  $\mathbf{r}_\omega^{(3)}(t)$  avec le terme source  $\left[ 3b \left( \mathbf{r}_\omega^{(1)} \right)^2 \left( \mathbf{r}_{-\omega}^{(1)} \right) \right]$  devient :

$$D(\omega)\mathbf{r}^{(3)} = -\frac{3be^3}{m^3 D^2(\omega)D(-\omega)} \mathbf{E}^3 - \frac{i\omega e}{m} \mathbf{r}^{(3)} \wedge \mathbf{B}. \quad (5.8)$$

Pour obtenir la polarisation volumique d'ordre (3) on somme sur les  $N$  entités microscopiques présentes dans le volume  $V$  :

$$\mathbf{P}^{(3)} = \frac{1}{V} \sum_i -e\mathbf{r}_{\omega i}^{(3)}.$$

Avec  $n = N/V$  la densité volumique électronique, l'équation (5.8) prend la forme :

$$\mathbf{P}^{(3)} = \frac{3nbe^4}{m^3 D^3(\omega)D(-\omega)} \mathbf{E}^3 - \frac{i\omega eB}{mD(\omega)} \mathbf{P}^{(3)} \wedge \mathbf{B}_z.$$

En supposant que le champ magnétique est orienté selon l'axe  $Oz$ ,  $\mathbf{B}_z = B\mathbf{e}_z$  l'équation d'évolution de la polarisation du troisième ordre s'écrit :

$$\mathbf{P}^{(3)} = \epsilon_0 \chi^{(3)} \mathbf{E}^3 - i\xi \mathbf{P}^{(3)} \wedge \mathbf{e}_z \quad \text{avec} \quad \begin{cases} \chi^{(3)} = \frac{3nbe^3}{m^2 D(\omega)^3 D(-\omega) \epsilon_0} \\ \xi = \frac{e\omega B}{mD(\omega)} \end{cases}.$$

La présence du champ magnétique permet également de briser l'isotropie de la polarisation, et conduit à un système d'équations couplées pour  $P_x^{(3)}$  et  $P_y^{(3)}$  que l'on peut résoudre, en notant  $\mathbf{E}_x^3$  (resp.  $(y, z)$ ), la composante du vecteur  $\mathbf{E}^3$  selon  $x$  (resp.  $(y, z)$ ) :

$$\begin{cases} P_x^{(3)} = \chi^{(3)} \epsilon_0 \mathbf{E}_x^3 - i\xi P_y^{(3)} \\ P_y^{(3)} = \chi^{(3)} \epsilon_0 \mathbf{E}_y^3 + i\xi P_x^{(3)} \\ P_z^{(3)} = \chi^{(3)} \epsilon_0 \mathbf{E}_z^3 \end{cases} \Leftrightarrow \begin{cases} P_x^{(3)} = \frac{\chi^{(3)} \epsilon_0}{1-\xi^2} \mathbf{E}_x^3 - \frac{i\xi \epsilon_0}{1-\xi^2} \chi^{(3)} \mathbf{E}_y^3 \\ P_y^{(3)} = \frac{\chi^{(3)} \epsilon_0}{1-\xi^2} \mathbf{E}_y^3 + \frac{i\xi \epsilon_0}{1-\xi^2} \chi^{(3)} \mathbf{E}_x^3 \\ P_z^{(3)} = \chi^{(3)} \epsilon_0 \mathbf{E}_z^3 \end{cases}.$$

Remarquant que  $\mathbf{E}_x^3$  s'écrit  $(E_x^2 + E_y^2 + E_z^2)E_x \mathbf{e}_x$  (resp.  $(y, z)$ ), on peut donner une expression de la polarisation au troisième ordre pour le mode  $\omega$  sous une forme contractée :

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^{(3)} = \epsilon_0 [\chi^{(3)}(E^2)] \mathbf{E} &= \epsilon_0 \begin{bmatrix} \frac{\chi^{(3)}}{1-\xi^2} (E_x^2 + E_y^2 + E_z^2) & -\frac{i\xi \chi^{(3)}}{1-\xi^2} (E_x^2 + E_y^2 + E_z^2) & 0 \\ \frac{i\xi \chi^{(3)}}{1-\xi^2} (E_x^2 + E_y^2 + E_z^2) & \frac{\chi^{(3)}}{1-\xi^2} (E_x^2 + E_y^2 + E_z^2) & 0 \\ 0 & 0 & X \end{bmatrix} \mathbf{E} \\ &= \epsilon_0 \begin{bmatrix} \epsilon_{xxxx} (E_x^2 + E_y^2 + E_z^2) & \epsilon_{xxyy} (E_x^2 + E_y^2 + E_z^2) & 0 \\ -\epsilon_{xxyy} (E_x^2 + E_y^2 + E_z^2) & \epsilon_{xxxx} (E_x^2 + E_y^2 + E_z^2) & 0 \\ 0 & 0 & X \end{bmatrix} \mathbf{E}. \end{aligned}$$

Les composantes  $\epsilon_{xxxx}$  et  $\epsilon_{xxxy}$  s'écrivent :

$$\begin{aligned}\epsilon_{xxxx} &= \frac{\chi^{(3)}}{1 - \xi^2} \\ \epsilon_{xxxy} &= -\frac{i\xi\chi^{(3)}}{1 - \xi^2}.\end{aligned}$$

On simplifie encore le problème en supposant que le champ électrique appartient au plan ( $Oxy$ ) afin de s'affranchir de la composante  $E_z$ . On obtient l'expression donnée en (5.4) :

$$\mathbf{P}^{(3)} = \epsilon_0[\chi^{(3)}(E^2)]\mathbf{E} = \epsilon_0 \begin{bmatrix} \epsilon_{xxxx}(E_x^2 + E_y^2) & \epsilon_{xxxy}(E_x^2 + E_y^2) & 0 \\ -\epsilon_{xxxy}(E_x^2 + E_y^2) & \epsilon_{xxxx}(E_x^2 + E_y^2) & 0 \\ 0 & 0 & X \end{bmatrix} \mathbf{E}. \quad (5.9)$$

### 5.3 Indices optiques non-linéaires

Dans ce paragraphe on cherche à inclure la contribution non-linéaire du courant de polarisation dans la méthode de résolution de la section (4.3.1).

#### 5.3.1 Contribution de la polarisation non-linéaire

En tenant compte de la polarisation volumique du troisième ordre l'équation de Maxwell-Ampère est transformée selon :

$$\nabla \wedge \mathbf{B} = \mu_0 \frac{\partial}{\partial t} (\mathbf{P}^{(1)} + \mathbf{P}^{(3)} + \epsilon_0 \mathbf{E}).$$

On suppose que la polarisation volumique totale peut se mettre sous une forme tensorielle à l'aide de la formule (5.9) :

$$\begin{aligned}\mathbf{P} &= \epsilon_0[\chi]\mathbf{E} + \epsilon_0[\chi^{(3)}]\mathbf{E}^3 \\ &= \epsilon_0 \begin{bmatrix} \chi_{xx} & \chi_{xy} & 0 \\ -\chi_{xy} & \chi_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & X \end{bmatrix} \mathbf{E} + \epsilon_0 \begin{bmatrix} \epsilon_{xxxx}(E_x^2 + E_y^2) & \epsilon_{xxxy}(E_x^2 + E_y^2) & 0 \\ -\epsilon_{xxxy}(E_x^2 + E_y^2) & \epsilon_{xxxx}(E_x^2 + E_y^2) & 0 \\ 0 & 0 & X \end{bmatrix} \mathbf{E} \\ &= \epsilon_0 \begin{bmatrix} \chi_{xx} + \epsilon_{xxxx}(E_x^2 + E_y^2) & \chi_{xy} + \epsilon_{xxxy}(E_x^2 + E_y^2) & 0 \\ -(\chi_{xy} + \epsilon_{xxxy}(E_x^2 + E_y^2)) & \chi_{xx} + \epsilon_{xxxx}(E_x^2 + E_y^2) & 0 \\ 0 & 0 & X \end{bmatrix} \mathbf{E}.\end{aligned}$$

On écrit alors les équations de Maxwell-Faraday et de Maxwell-Ampère dans le cas non-linéaire à l'aide des formules (5.10) et (5.11) :

$$\nabla \wedge \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad \Leftrightarrow \quad \nabla \wedge \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (5.10)$$

$$\nabla \wedge \mathbf{B} = \mu_0 \frac{\partial}{\partial t} (\mathbf{P}^{(1)} + \mathbf{P}^{(3)} + \epsilon_0 \mathbf{E}) \quad \nabla \wedge \mathbf{B} = \mu_0 \epsilon_0 [\epsilon'] \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t}, \quad (5.11)$$

où tenant compte des relations ( $\epsilon_{xx} = 1 + \chi_{xx}$ ) et  $\epsilon_{xy} = \chi_{xy}$ , le tenseur  $[\epsilon']$  prend la forme suivante :

$$[\epsilon'] = \begin{bmatrix} \epsilon_{xx} + \epsilon_{xxxx}(E_x^2 + E_y^2) & \epsilon_{xy} + \epsilon_{xxxy}(E_x^2 + E_y^2) & 0 \\ -(\epsilon_{xy} + \epsilon_{xxxy}(E_x^2 + E_y^2)) & \epsilon_{xx} + \epsilon_{xxxx}(E_x^2 + E_y^2) & 0 \\ 0 & 0 & X \end{bmatrix}. \quad (5.12)$$

Le découplage des équations de Maxwell-Faraday (5.10) et Maxwell-Ampère (5.11) dans le plan de Fourier donne un système d'équations identique à celui de la section (4.1.3), à condition de substituer  $[\epsilon']$  à  $[\epsilon]$ , c'est-à-dire :

$$n^2 E_x = (\epsilon'_{xx} E_x + \epsilon'_{xy} E_y) \quad (5.13)$$

$$n^2 E_y = (-\epsilon'_{xy} E_x + \epsilon'_{xx} E_y). \quad (5.14)$$

On écrit les coefficients du tenseur à l'aide d'une autre notation afin d'éviter la répétition des indices  $x$  et  $y$  en notant :

$$\begin{cases} \epsilon'_{xx} = \epsilon_{xx} + \epsilon_{xxxx}(E_x^2 + E_y^2) = A + B(E_x^2 + E_y^2) \\ \epsilon'_{xy} = \epsilon_{xy} + \epsilon_{xyyy}(E_x^2 + E_y^2) = a + b(E_x^2 + E_y^2) \end{cases} \Leftrightarrow \begin{cases} A = \epsilon_{xx} \\ a = \epsilon_{xy} \\ B = \epsilon_{xxxx} \\ b = \epsilon_{xyyy} \end{cases}.$$

Le système d'équations à résoudre devient ensuite :

$$(n^2 - A)E_x = aE_y + BE_x^3 + BE_y^2 E_x + bE_x^2 E_y + bE_y^3 \quad (5.15)$$

$$(n^2 - A)E_y = -aE_x + BE_y^3 + BE_x^2 E_y - bE_x^3 - bE_y^2 E_x. \quad (5.16)$$

Pour résoudre ce système on s'inspire de la résolution du cas linéaire pour lequel ( $b = B = 0$ ). L'équation (5.15) contient le terme  $aE_y$  et (5.16) le terme  $-aE_x$ . En divisant (5.15) par  $E_x$  et (5.16) par  $E_y$  on peut former de deux manières le rapport  $\frac{E_y}{E_x}$ . Dans le cas linéaire où ( $b = B = 0$ ) cette opération est équivalente à former le déterminant qui conduit à  $n_{\pm}^2 = A \pm ia$ . Ici, dans le cas non-linéaire, cette opération conduit, pour ( $E_x \neq E_y \neq 0$ ) à une équation du second degré pour la variable  $X = (n^2 - A)$  :

$$X^2 + \beta X + \gamma = 0,$$

avec les coefficients :

$$\begin{aligned} \beta &= - \left( 2B(E_x^2 + E_y^2) + b \left( \frac{E_y^3}{E_x} - \frac{E_x^3}{E_y} \right) \right) \\ \gamma &= a^2 + B^2(E_x^2 + E_y^2)^2 - Bb \left( \frac{E_x^5}{E_y} + E_y E_x^3 - E_y^3 E_x - \frac{E_y^5}{E_x} \right) - b^2 (E_x^4 + E_y^4 + 2E_x^2 E_y^2). \end{aligned}$$

Après calcul du discriminant on exprime les deux solutions pour  $X = (n^2 - A)$  et on en déduit celles de  $n_{\pm}^2$  :

$$\begin{aligned} n_{\pm}^2 &= A + \frac{1}{2} \left( 2B(E_x^2 + E_y^2) + b \left( \frac{E_y^3}{E_x} - \frac{E_x^3}{E_y} \right) \right) \\ &\quad \pm \frac{1}{2} \left( -4a^2 + b^2 \left( 4E_x^4 + 4E_y^4 + \frac{E_y^6}{E_x^2} + 6E_x^2 E_y^2 + \frac{E_x^6}{E_y^2} \right) \right)^{1/2}. \end{aligned} \quad (5.17)$$

En remplaçant  $A$ ,  $a$ ,  $B$  et  $b$  par leurs expressions, (5.17) devient :

$$\begin{aligned} n_{\pm}^2 &= \epsilon_{xx} + \frac{1}{2} \left( 2\epsilon_{xxxx}(E_x^2 + E_y^2) + \epsilon_{xyyy} \left( \frac{E_y^3}{E_x} - \frac{E_x^3}{E_y} \right) \right) \\ &\quad \pm \frac{1}{2} \left( -4\epsilon_{xy}^2 + \epsilon_{xyyy}^2 \left( 4E_x^4 + 4E_y^4 + \frac{E_y^6}{E_x^2} + 6E_x^2 E_y^2 + \frac{E_x^6}{E_y^2} \right) \right)^{1/2}. \end{aligned} \quad (5.18)$$

On choisit de **simplifier cette expression à l'aide d'un argument de symétrie**. Depuis le début de l'étude, en plaçant le champ magnétique selon l'axe  $Oz$  qui est aussi la direction de propagation de l'onde, le système possède une invariance physique dans le plan  $Oxy$ . Quelque soit la direction du champ électrique dans le plan  $Oxy$  le phénomène physique reste identique. Ainsi, on peut toujours se placer dans une configuration pour laquelle  $E_x \approx E_y \approx E$  (Figure 5.2).

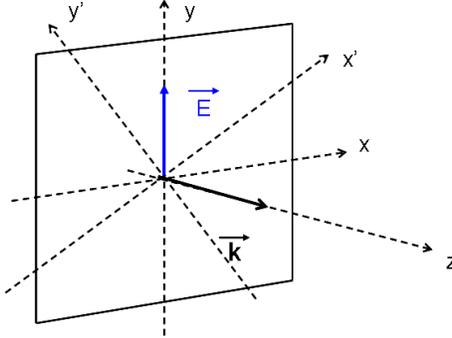


FIG. 5.2 – Invariance du phénomène physique dans le plan  $Oxy$ .

En utilisant cette hypothèse on choisit d'approximer :

$$\begin{aligned} (E_x^2 + E_y^2) &\approx 2E^2 \\ \left(4E_x^4 + 4E_y^4 + \frac{E_y^6}{E_x^2} + 6E_x^2E_y^2 + \frac{E_x^6}{E_y^2}\right) &\approx 16E^4 \\ \left(\frac{E_y^3}{E_x} - \frac{E_x^3}{E_y}\right) &\approx 0. \end{aligned}$$

L'équation (5.18) prend la forme (5.5) que nous avons introduite au début du chapitre. Elle représente les **indices optiques circulaires dans un milieu non-linéaire anisotrope** :

$$n_{\pm}^2 \approx \epsilon_{xx} + 2\epsilon_{xxxx}E^2 \pm i(\epsilon_{xy}^2 - 4\epsilon_{xxxy}^2E^4)^{1/2}. \quad (5.19)$$

#### Remarques

- En posant  $E = 0$  on retrouve la formule linéaire  $n_{\pm}^2 = \epsilon_{xx} \pm i\epsilon_{xy}$ . Première condition.
- En mode non-linéaire la partie isotrope de l'indice vaut  $\epsilon_{xx} + 2\epsilon_{xxxx}E^2$ . La partie anisotrope s'écrit  $(\epsilon_{xy}^2 - 4\epsilon_{xxxy}^2E^4)^{1/2}$  et il est intéressant de constater que **l'influence du champ externe conduit à une diminution de la composante anisotrope**.
- Il faut être prudent avec le qualificatif circulaire. Dans le cas linéaire les indices  $n_{\pm}^2$  représentent bien les valeurs propres du tenseur diélectrique associées aux vecteurs propres des modes (+) et (-) dans le formalisme de Jones. Il s'agit d'algèbre linéaire. Ici les valeurs de (5.18) où (5.19) ne peuvent plus être associées aux modes propres (+) et (-) selon la même définition. Il s'agit d'algèbre non-linéaire.

### 5.3.2 Contribution du couplage spin-orbite et courant magnéto-optique

L'interaction spin-orbite est le paramètre prépondérant dans les phénomènes magnéto-optiques impliquant les matériaux ferromagnétiques. Généralement elle est prise en compte microscopiquement (section 4.2) en étant contenue dans l'élément  $\epsilon_{xy}$ . On propose ici d'améliorer la formule (5.19) en intégrant un paramètre macroscopique lié à l'interaction spin-orbite.

#### Courant magnéto-optique

Pour cela on utilise les résultats de la section (3.2.1) sur la densité de courant de probabilité quantique. Nous avons montré qu'au second ordre en  $1/m$  le courant électronique s'écrit :

$$\mathbf{j}(u^\dagger, u) = \frac{e\hbar}{2m} (u\nabla u^\dagger - u^\dagger\nabla u) - \frac{e^2}{m} \mathbf{A}u^\dagger u + \frac{e\hbar}{2m} \nabla \wedge (u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u) - \frac{e^2\hbar}{4m^2c^2} u^\dagger \boldsymbol{\sigma} u \wedge \mathbf{E}. \quad (5.20)$$

Les deux premiers termes proviennent de l'expression de l'énergie cinétique en présence d'un champ électromagnétique. Le second terme représente un courant de spin provenant de l'effet Zeeman et le dernier terme est obtenu à partir de l'interaction spin-orbite. **On peut faire un lien entre ce courant et le courant macroscopique des équations de Maxwell :**

$$\mathbf{j} = [\sigma]\mathbf{E} + \epsilon_0[\chi] \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \nabla \wedge \mathbf{M}.$$

Argyres a montré que les deux premiers termes du courant quantique pouvaient être associés au courant macroscopique de polarisation et de conduction ([61] et section (4.2.2)). Le courant de spin semble équivalent au courant d'aimantation :

$$\sum_i \frac{e\hbar}{2m} \nabla \wedge (u_i^\dagger \boldsymbol{\sigma} u_i) = \nabla \wedge \left( \sum_i \frac{e\hbar}{2m} (u_i^\dagger \boldsymbol{\sigma} u_i) \right) \equiv \nabla \wedge \mathbf{M}.$$

Ainsi, on peut associer au courant quantique du deuxième ordre un équivalent macroscopique :

$$\sum_i -\frac{e^2\hbar}{4m^2c^2} u_i^\dagger \boldsymbol{\sigma} u_i \wedge \mathbf{E} = -\frac{e}{2mc^2} \left( \sum_i \frac{e\hbar}{2m} (u_i^\dagger \boldsymbol{\sigma} u_i) \right) \wedge \mathbf{E} \equiv -\frac{e}{2mc^2} \mathbf{M} \wedge \mathbf{E}. \quad (5.21)$$

La forme (5.21) est intéressante. A la fin de la section (4.3.3) nous avons expliqué que la partie non diagonale du tenseur électromagnétique pouvait s'écrire :

$$\mathbf{j}_{MO} = \epsilon_{xx} \begin{bmatrix} 0 & iQ & 0 \\ -iQ & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{bmatrix} = \alpha \mathbf{M} \wedge \mathbf{E}, \quad (5.22)$$

et que le courant (5.22) s'interprétait comme un courant magnéto-optique. L'équation du courant microscopique (5.20) permet de construire un **courant macroscopique, de nature vectorielle identique à (5.22), provenant directement de l'interaction spin-orbite**. On propose de compléter l'expression du courant macroscopique des équations de Maxwell selon

$$\mathbf{j} = [\sigma]\mathbf{E} + \epsilon_0[\chi] \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \nabla \wedge \mathbf{M} - \frac{e}{2mc^2} \mathbf{M} \wedge \mathbf{E},$$

et d'étudier la répercussion du nouveau terme sur l'expression des indices optiques.

#### Forme tensorielle du courant magnéto-optique de spin-orbite

On choisit d'adopter les notations suivantes pour décrire ce nouveau courant :

$$\mathbf{j}_{MO} = -\frac{e}{2mc^2} \mathbf{M} \wedge \mathbf{E} \equiv \alpha \mathbf{M} \wedge \mathbf{E}. \quad (5.23)$$

Pour incorporer ce terme source dans l'expression des indices optiques, il faut au préalable écrire le courant sous une forme tensorielle impliquant le vecteur champ électrique. En supposant une aimantation orientée selon l'axe  $Oz$  on peut écrire :

$$\begin{aligned} \mathbf{j}_{MO} = \alpha \mathbf{M} \wedge \mathbf{E} &= \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ M_z \end{bmatrix} \wedge \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{bmatrix} = \alpha \begin{bmatrix} -M_z E_y \\ M_z E_x \\ 0 \end{bmatrix} = \alpha \begin{bmatrix} 0 & -M_z & 0 \\ M_z & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{bmatrix} \\ &= \alpha M_z \begin{bmatrix} 0 & -1 & 0 \\ 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \mathbf{E}. \end{aligned} \quad (5.24)$$

Or, dans la matière, **le champ total doit inclure les champs de polarisation**. Il faut donc compléter le courant magnéto-optique selon :

$$\mathbf{j} = \alpha \mathbf{M} \wedge \left( \mathbf{E} + \frac{\mathbf{P}}{\epsilon_0} + \frac{\mathbf{P}^{(3)}}{\epsilon_0} \right).$$

La contribution du courant relative à la polarisation  $\mathbf{P} = \epsilon_0 [\chi] \mathbf{E}$  s'écrit :

$$\begin{aligned} \alpha \mathbf{M} \wedge \frac{\mathbf{P}}{\epsilon_0} &= \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ M_z \end{bmatrix} \wedge \begin{bmatrix} \chi_{xx} & \chi_{xy} & 0 \\ -\chi_{xy} & \chi_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & X \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{bmatrix} = \alpha \begin{bmatrix} M_z(\chi_{xy} E_x - \chi_{xx} E_y) \\ M_z(\chi_{xx} E_x + \chi_{xy} E_y) \\ 0 \end{bmatrix} \\ &= \alpha M_z \begin{bmatrix} \chi_{xy} & -\chi_{xx} & 0 \\ \chi_{xx} & \chi_{xy} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \mathbf{E}, \end{aligned} \quad (5.25)$$

et selon nos définitions la contribution non-linéaire issue de la polarisation  $\mathbf{P}^{(3)} = \epsilon_0 [\chi^{(3)}(E^2)] \mathbf{E}^3$  :

$$\begin{aligned} \alpha \mathbf{M} \wedge \frac{\mathbf{P}^{(3)}}{\epsilon_0} &= \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ M_z \end{bmatrix} \wedge \begin{bmatrix} \epsilon_{xxxx}(E_x^2 + E_y^2) & \epsilon_{xxxy}(E_x^2 + E_y^2) & 0 \\ -\epsilon_{xxxy}(E_x^2 + E_y^2) & \epsilon_{xxxx}(E_x^2 + E_y^2) & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \mathbf{E} \\ &= \alpha M_z \begin{bmatrix} \epsilon_{xxxy}(E_x^2 + E_y^2) & -\epsilon_{xxxx}(E_x^2 + E_y^2) & 0 \\ \epsilon_{xxxx}(E_x^2 + E_y^2) & \epsilon_{xxxy}(E_x^2 + E_y^2) & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \mathbf{E}. \end{aligned} \quad (5.26)$$

En regroupant les formules (5.24), (5.25) et (5.26) la forme tensorielle complète du courant magnéto-optique devient :

$$\begin{aligned} \mathbf{j}_{MO} &= \alpha \mathbf{M} \wedge \left( \mathbf{E} + \frac{\mathbf{P}}{\epsilon_0} + \frac{\mathbf{P}^{(3)}}{\epsilon_0} \right) = \frac{\alpha \mathbf{M}}{\epsilon_0} \wedge \left( \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} + \mathbf{P}^{(3)} \right) \\ &= \frac{\alpha \mathbf{M}}{\epsilon_0} \wedge \left( \epsilon_0 [\epsilon] \mathbf{E} + \epsilon_0 [\chi^{(3)}(E^2)] \mathbf{E} \right) \\ &= \frac{\alpha \mathbf{M}}{\epsilon_0} \wedge (\epsilon_0 [\epsilon'] \mathbf{E}) \end{aligned} \quad (5.27)$$

$$= \alpha M_z \begin{bmatrix} \epsilon_{xy} + \epsilon_{xxxy}(E_x^2 + E_y^2) & -\epsilon_{xx} - \epsilon_{xxxx}(E_x^2 + E_y^2) & 0 \\ \epsilon_{xx} + \epsilon_{xxxx}(E_x^2 + E_y^2) & \epsilon_{xy} + \epsilon_{xxxy}(E_x^2 + E_y^2) & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \mathbf{E}, \quad (5.28)$$

où  $[\epsilon']$  est le tenseur donné par la formule (5.12).

### Modification des indices

La résolution est identique aux cas précédents, il faut découpler les équations de Maxwell-Faraday et de Maxwell-Ampère. L'équation de Maxwell-Faraday reste inchangée et en rajoutant le courant magnéto-optique sous la forme (5.27) l'équation de Maxwell-Ampère s'écrit :

$$\nabla \wedge \mathbf{B} = \mu_0 \epsilon_0 [\epsilon'] \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \frac{\mu_0 \alpha \mathbf{M}}{\epsilon_0} \wedge (\epsilon_0 [\epsilon'] \mathbf{E}).$$

En travaillant dans le plan de Fourier avec la transposition  $\partial_t \mapsto -i\omega$ ,  $\nabla = i\mathbf{k}$  et avec une onde plane se propageant selon l'axe  $Oz$  le système s'écrit :

$$\begin{aligned} i\mathbf{k} \wedge \mathbf{E} &= i\omega \mathbf{B} \\ i\mathbf{k} \wedge \mathbf{B} &= -\mu_0 \epsilon_0 i\omega \left( [\epsilon'] \mathbf{E} + \frac{i\alpha \mathbf{M}}{\omega \epsilon_0} \wedge [\epsilon'] \mathbf{E} \right). \end{aligned}$$

En projetant sur les composantes des champs  $\mathbf{E}$  et  $\mathbf{B}$ , et après élimination des composantes magnétiques, on obtient un système d'équations identique à (5.13) et (5.14) à condition de rajouter la contribution du courant de spin-orbite donnée par (5.28) :

$$n^2 E_x = \left( \epsilon'_{xx} + \epsilon'_{xy} \frac{i\alpha M_z}{\omega \epsilon_0} \right) E_x + \left( \epsilon'_{xy} - \epsilon'_{xx} \frac{i\alpha M_z}{\omega \epsilon_0} \right) E_y \quad (5.29)$$

$$n^2 E_y = \left( \epsilon'_{xx} + \epsilon'_{xy} \frac{i\alpha M_z}{\omega \epsilon_0} \right) E_y - \left( \epsilon'_{xy} - \epsilon'_{xx} \frac{i\alpha M_z}{\omega \epsilon_0} \right) E_x. \quad (5.30)$$

En effet, étant donné que les composantes du tenseur  $[\epsilon']$  sont données par :

$$\begin{aligned} \epsilon'_{xx} &= \epsilon_{xx} + \epsilon_{xxxx}(E_x^2 + E_y^2) \\ \epsilon'_{xy} &= \epsilon_{xy} + \epsilon_{xxxy}(E_x^2 + E_y^2), \end{aligned}$$

les expressions (5.29) et (5.30) sont développées de la manière suivante :

$$\begin{aligned} n^2 E_x &= \left( \epsilon_{xx} + \epsilon_{xy} \frac{i\alpha M_z}{\omega \epsilon_0} \right) E_x + \left( \epsilon_{xxxx} + \epsilon_{xxxy} \frac{i\alpha M_z}{\omega \epsilon_0} \right) E_x^3 + \left( \epsilon_{xxxx} + \epsilon_{xxxy} \frac{i\alpha M_z}{\omega \epsilon_0} \right) E_y^2 E_x \\ &+ \left( \epsilon_{xy} - \epsilon_{xx} \frac{i\alpha M_z}{\omega \epsilon_0} \right) E_y + \left( \epsilon_{xxxy} - \epsilon_{xxxx} \frac{i\alpha M_z}{\omega \epsilon_0} \right) E_y^3 + \left( \epsilon_{xxxy} - \epsilon_{xxxx} \frac{i\alpha M_z}{\omega \epsilon_0} \right) E_x^2 E_y \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} n^2 E_y &= \left( \epsilon_{xx} + \epsilon_{xy} \frac{i\alpha M_z}{\omega \epsilon_0} \right) E_y + \left( \epsilon_{xxxx} + \epsilon_{xxxy} \frac{i\alpha M_z}{\omega \epsilon_0} \right) E_y^3 + \left( \epsilon_{xxxx} + \epsilon_{xxxy} \frac{i\alpha M_z}{\omega \epsilon_0} \right) E_x^2 E_y \\ &- \left( \epsilon_{xy} - \epsilon_{xx} \frac{i\alpha M_z}{\omega \epsilon_0} \right) E_x - \left( \epsilon_{xxxy} - \epsilon_{xxxx} \frac{i\alpha M_z}{\omega \epsilon_0} \right) E_x^3 - \left( \epsilon_{xxxy} - \epsilon_{xxxx} \frac{i\alpha M_z}{\omega \epsilon_0} \right) E_y^2 E_x, \end{aligned}$$

ceci afin de pouvoir écrire le présent système d'équations sous une forme identique à (5.15) et (5.16) :

$$\begin{aligned} n^2 E_x &= A E_x + B E_x^3 + B E_y^2 E_x + a E_y + b E_y^3 + b E_x^2 E_y \\ n^2 E_y &= A E_y + B E_y^3 + B E_x^2 E_y - a E_x - b E_x^3 - b E_y^2 E_x, \end{aligned}$$

mais où les coefficients  $A$ ,  $a$ ,  $B$  et  $b$  doivent être remplacés par :

$$\begin{cases} A = \left( \epsilon_{xx} + \epsilon_{xy} \frac{i\alpha M_z}{\omega \epsilon_0} \right) \\ a = \left( \epsilon_{xy} - \epsilon_{xx} \frac{i\alpha M_z}{\omega \epsilon_0} \right) \end{cases} \quad \begin{cases} B = \left( \epsilon_{xxxx} + \epsilon_{xxxy} \frac{i\alpha M_z}{\omega \epsilon_0} \right) \\ b = \left( \epsilon_{xxxy} - \epsilon_{xxxx} \frac{i\alpha M_z}{\omega \epsilon_0} \right) \end{cases}. \quad (5.31)$$

La solution d'un tel système existe, c'est celle donnée par la formule (5.17). Cette expression (non précisée ici) est simplifiée au moyen des mêmes arguments de symétrie que précédemment. La résolution approchée des indices non-linéaires avec ajout du courant magnéto-optique est identique à (5.19) à condition de remplacer les éléments de tenseur modifiés par (5.31), ce qui donne finalement :

$$n^2_{\pm} \approx \left( \epsilon_{xx} + \epsilon_{xy} \frac{i\alpha M_z}{\omega\epsilon_0} \right) + 2 \left( \epsilon_{xxxx} + \epsilon_{xxxxy} \frac{i\alpha M_z}{\omega\epsilon_0} \right) E^2 \\ \pm i \left( \left( \epsilon_{xy} - \epsilon_{xx} \frac{i\alpha M_z}{\omega\epsilon_0} \right)^2 - 4 \left( \epsilon_{xxxxy} - \epsilon_{xxxx} \frac{i\alpha M_z}{\omega\epsilon_0} \right)^2 E^4 \right)^{1/2}. \quad (5.32)$$

### Remarques

- Si on néglige la contribution non-linéaire du troisième ordre les indices optiques circulaires en présence du courant magnéto-optique s'écrivent :

$$n^2_{\pm} = \left( \epsilon_{xx} + \epsilon_{xy} \frac{i\alpha M_z}{\omega\epsilon_0} \right) \pm i \left( \epsilon_{xy} - \epsilon_{xx} \frac{i\alpha M_z}{\omega\epsilon_0} \right).$$

- En notant  $\lambda_{MO} = \frac{i\alpha M_z}{\omega\epsilon_0}$  le paramètre du courant magnéto-optique la formule (5.30) peut s'écrire :

$$n^2_{\pm} \approx (\epsilon_{xx} + \epsilon_{xy}\lambda_{MO}) + 2(\epsilon_{xxxx} + \epsilon_{xxxxy}\lambda_{MO}) E^2 \\ \pm i \left( (\epsilon_{xy} - \epsilon_{xx}\lambda_{MO})^2 - 4(\epsilon_{xxxxy} - \epsilon_{xxxx}\lambda_{MO})^2 E^4 \right)^{1/2}. \quad (5.33)$$

- Si on pose  $\lambda_{MO} = 0$ , on retrouve bien (5.19).

## 5.4 Modélisation de la réponse magnéto-optique

On utilise la formule (5.33) pour modéliser la réponse magnéto-optique non-linéaire réalisée dans l'expérience Faraday en faisceau unique [8]. La section (5.4.1) précise les paramètres physiques accessibles par les données de l'expériences et indique ceux à déterminer où choisir pour la modélisation. La section (5.4.2) est consacrée à la description des propriétés électroniques du nickel qui permettent la détermination des éléments du tenseur diélectrique dans la section (5.4.3).

### 5.4.1 Principe

#### Précisions sur l'expérience Faraday en faisceau unique

On précise tout d'abord comment est réalisée la première expérience de [8]. Il s'agit d'envoyer une impulsion laser ultra-brève de  $\Delta t = 48$  fs sur un film ferromagnétique de nickel d'épaisseur  $d = 7.5$  nm et d'étudier les angles de rotation  $\theta$  et d'ellipticité  $\eta$  en transmission. L'étude est menée sur 3 ordres de grandeurs d'énergies absorbées allant de  $10^{-3}$  mJ/cm<sup>2</sup> à 1 mJ/cm<sup>2</sup> (Figure 5.3). La figure expérimentale présente les angles dépendant de l'énergie absorbée, normalisés à la valeur obtenue pour l'énergie d'absorption minimale. L'énergie absorbée  $E_{abs} = I_A/\Delta t$  est déterminée par la relation  $I_0 = I_R + I_T + I_A$  où  $I_0$ ,  $I_R$  et  $I_T$  sont les intensités des faisceaux incident, réfléchi et transmis. D'après les auteurs de [8], le coefficient d'absorption  $A = I_A/I_0$  est identique sur toute la gamme d'énergie. Par exemple, avec  $I_0 = 1.08$ ,  $I_R = 0.35$  et  $I_T = 0.31$  (en mJ/cm<sup>2</sup>), le coefficient d'absorption vaut  $A = 0.388$ . En utilisant la relation :

$$I_0 = \frac{c\epsilon_0 E^2}{2} = \frac{E_{abs}(\text{J/m}^2)}{A\Delta t(\text{s})},$$

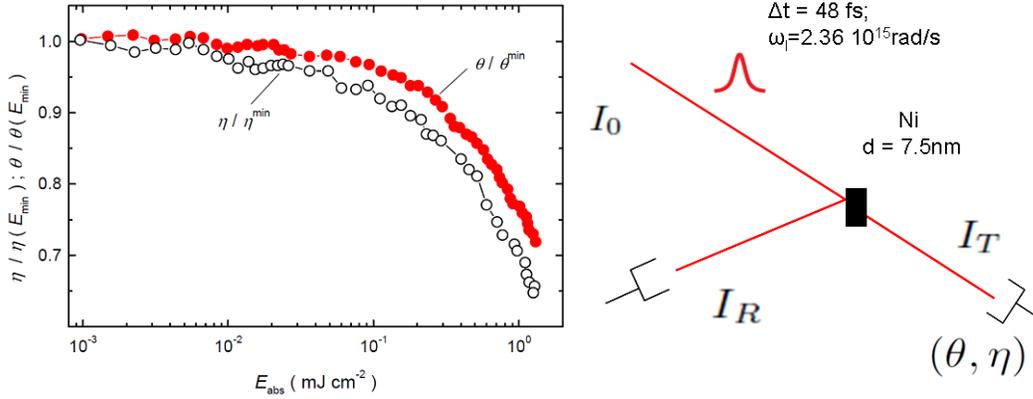


FIG. 5.3 – Evolution des paramètres magnéto-optiques en fonction de l'énergie absorbée. Schéma et paramètres de l'expérience.

on peut obtenir une relation entre l'énergie absorbée  $E_{abs}$  et l'amplitude  $E$  du champ électrique incident :

$$E = \sqrt{\frac{2 * 10 * E_{abs}(\text{mJ}/\text{cm}^2)}{0.388 * 48 \cdot 10^{-15}(\text{s}) * c * \epsilon_0}}. \quad (5.34)$$

Ainsi, la gamme d'énergie absorbée variant de  $10^{-3}$  mJ/cm<sup>2</sup> à 1 mJ/cm<sup>2</sup> correspond à des amplitudes de champ électrique allant de  $10^7$  V/m à  $10^9$  V/m.

### Proposition d'étude

On propose de réaliser une modélisation de l'expérience précédente en utilisant la définition de la phase Faraday  $\phi_F$  obtenue dans la section (4.1.4) :

$$\phi_F = \frac{\omega_l d}{2c} (n_+ - n_-) \equiv \theta + i\eta,$$

et de calculer les valeurs des paramètres magnéto-optiques normalisés  $\theta/\theta^{min}$  et  $\eta/\eta^{min}$  :

$$\frac{\theta}{\theta^{min}} \equiv \frac{\theta(E_{abs})}{\theta(E_{abs}^{min})} = \frac{Re[\phi_F(E_{abs})]}{Re[\phi_F(E_{abs}^{min})]} \quad \frac{\eta}{\eta^{min}} \equiv \frac{\eta(E_{abs})}{\eta(E_{abs}^{min})} = \frac{Im[\phi_F(E_{abs})]}{Im[\phi_F(E_{abs}^{min})]},$$

avec la formule des indices optiques non-linéaires anisotropes :

$$n_{\pm}^2 \approx (\epsilon_{xx} + \epsilon_{xy}\lambda_{MO}) + 2(\epsilon_{xxxx} + \epsilon_{xxy}\lambda_{MO})E^2 \\ \pm i \left( (\epsilon_{xy} - \epsilon_{xx}\lambda_{MO})^2 - 4(\epsilon_{xxy} - \epsilon_{xxxx}\lambda_{MO})^2 E^4 \right)^{1/2},$$

où le lien entre l'amplitude du champ électrique  $E$  et l'énergie absorbée  $E_{abs}$  est donné par (5.34). L'impulsion ultra-brève de 48 fs centrée autour de la longueur d'onde  $\lambda_l = 799$  nm [8] sera approximée par une onde plane de pulsation  $\omega_l = \frac{2\pi c}{\lambda_l} = 2.36 * 10^{15}$  rad/s. L'épaisseur du film de Nickel vaut  $d = 7.5$  nm. Pour achever ce travail, il reste à déterminer les éléments  $\epsilon_{xx}$ ,  $\epsilon_{xy}$ ,  $\epsilon_{xxxx}$  et  $\epsilon_{xxy}$  de la formule précédente dans le cas du Nickel. Ce travail est réalisé dans le paragraphe suivant.

### 5.4.2 Description du film de Nickel

On choisit **pour faire simple**, de modéliser la réponse diélectrique du nickel de **manière classique** sur la base des modèles de Drude-Voigt. Le nickel est un matériau présentant des propriétés magnétiques et métalliques. Sa structure électronique est  $[\text{Ar}]4s^23d^8$ . Pour décrire les charges on considère que le matériau possède des charges liées et des charges libres. Avec les modèles classiques que l'on utilise, les charges liées sont nécessaires pour générer des effets de polarisation non-linéaire. Les charges libres représentent les électrons de conduction. Ainsi, en présence d'un champ électrique externe  $\mathbf{E}$ , les deux populations génèrent une polarisation volumique de charges liées  $\mathbf{P}_b$  ( $b$  pour "bound") et une polarisation de charges libres  $\mathbf{P}_f$  ( $f$  pour "free") qui n'est autre que le courant de conduction (Figure 5.4). Ainsi le champ électrique dans la matière  $\mathbf{E}_{mat}$  s'écrit :

$$\mathbf{E}_{mat} = \mathbf{E} + \frac{\mathbf{P}_f}{\epsilon_0} + \frac{\mathbf{P}_b}{\epsilon_0}.$$

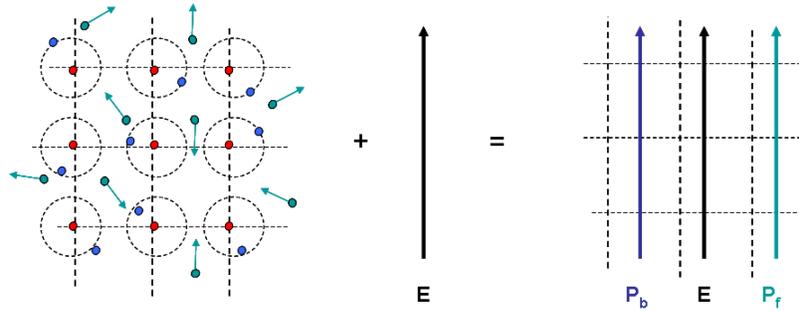


FIG. 5.4 – Modélisation de la réponse électronique du Nickel à un champ électrique externe.

Il faut nous ramener ensuite à une description monoélectronique pour utiliser le modèle classique de Voigt. On va donc supposer que les 10 électrons de valence du nickel peuvent se décrire à l'aide d'un modèle à un électron écranté par les autres électrons et le noyau. Ensuite, d'après [73] et [74] il est déterminé en utilisant les calculs de structure de bande, qu'il y a en moyenne 0.6 **électrons de conduction par site atomique** qui participent à la conduction électrique. Dans ce modèle à un électron, on choisit de dire qu'une fraction  $x_b$  de l'électron est associée à une charge liée, et une fraction  $x_f$  à une charge libre, de telle sorte que  $x_b + x_f = 1$ . On pose alors  $x_f = 0.6$  et  $x_b = 0.4$  (Figure 5.5). Cette fragmentation de la charge élémentaire ne pose pas de problème car en sommant sur tous les sites atomiques elle équivaut à définir une densité volumique pour les charges libres et pour les charges liées.

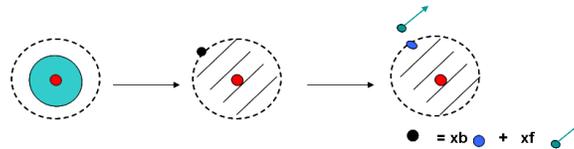


FIG. 5.5 – Modélisation d'un site atomique du Nickel.

Il nous reste à faire une hypothèse sur **le couplage entre les deux populations**. Avec une telle description, les électrons libres ne peuvent être affectés par les aspects non-linéaires. Dans la modélisation

du modèle de Drude pour les électrons, il n'y a pas de force de rappel donc pas de non-linéarité possible. On va donc supposer que les charges libres ressentent la polarisation linéaire et non-linéaire  $\mathbf{P}_b = \mathbf{P}_b^{(1)} + \mathbf{P}_b^{(3)}$  induite par les charges liées. On permet par ce couplage la génération d'une polarisation non-linéaire des charges libres  $\mathbf{P}_f^{(3)}$ . En revanche on fait l'hypothèse que les charges liées sont indépendantes et que leur dynamique n'est pas influencée par les électrons de conduction (Figure 5.6). Ainsi, le champ dans la matière ressenti par les charges liées s'écrit :

$$\mathbf{E}_{mat} = \mathbf{E} + \frac{1}{\epsilon_0} \left( \mathbf{P}_b^{(1)} + \mathbf{P}_b^{(3)} \right), \quad (5.35)$$

et celui ressenti par les charges libres :

$$\mathbf{E}_{mat} = \mathbf{E} + \frac{1}{\epsilon_0} \left( \mathbf{P}_b^{(1)} + \mathbf{P}_f^{(1)} + \mathbf{P}_b^{(3)} + \mathbf{P}_f^{(3)} \right). \quad (5.36)$$

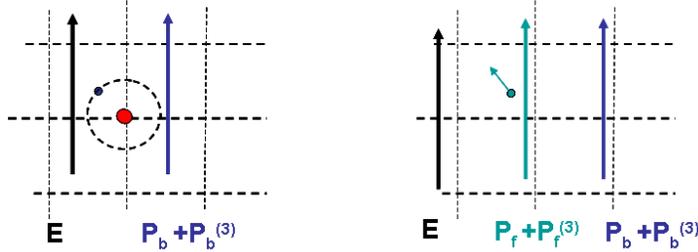


FIG. 5.6 – Hypothèses de couplage entre les populations de charges libres et liées.

Concernant la modélisation des propriétés magnétiques du nickel, la tâche est plus ardue car le magnétisme ne s'explique pas classiquement. On va donc supposer que le champ magnétique interne dans la matière  $\mathbf{B}_{mat}$  est associé au **champ moléculaire de Weiss**. On expliquera dans la section (5.4.1) comment estimer sa valeur.

### 5.4.3 Détermination des éléments de tenseur

On utilise la modélisation précédente pour calculer les fonctions de réponse linéaire et non-linéaire des charges libres et liées, et ainsi déterminer les éléments diagonaux et non diagonaux du tenseur de susceptibilité diélectrique  $[\epsilon']$  :

$$\begin{aligned} \mathbf{D} &= \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}_b^{(1)} + \mathbf{P}_f^{(1)} + \mathbf{P}_b^{(3)} + \mathbf{P}_f^{(3)} \\ &= \epsilon_0 \left( 1 + [\chi_b^{(1)}] + [\chi_f^{(1)}] + [\chi_b^{(3)}(E^2)] + [\chi_f^{(3)}(E^2)] \right) \mathbf{E} \\ &\equiv \epsilon_0 [\epsilon'] \mathbf{E}. \end{aligned} \quad (5.37)$$

Concernant la **matière diélectrique**, l'équation d'évolution des charges liées est donnée par le modèle de Voigt non-linéaire (section 5.2). On précise juste que l'amortissement  $\tau_b$  est relatif aux charges liées et que le champ électrique dans la matière est donné par (5.35) :

$$\ddot{\mathbf{r}}_b + \frac{1}{\tau_b} \dot{\mathbf{r}}_b + \omega_0^2 \mathbf{r}_b = +b \mathbf{r}_b^3 - \frac{e}{m} \left( \mathbf{E} + \frac{1}{\epsilon_0} \left( \mathbf{P}_b^{(1)} + \mathbf{P}_b^{(3)} \right) + \dot{\mathbf{r}}_b \wedge \mathbf{B}_{mat} \right). \quad (5.38)$$

L'équation (5.38) est séparée en deux avec  $\mathbf{r}_b(t) = \mathbf{r}_b^{(1)}(t) + \mathbf{r}_b^{(3)}(t)$  :

$$\ddot{\mathbf{r}}_b^{(1)} + \frac{1}{\tau_b} \dot{\mathbf{r}}_b^{(1)} + \omega_0^2 \mathbf{r}_b^{(1)} = -\frac{e}{m} \left( \mathbf{E} + \frac{\mathbf{P}_b^{(1)}}{\epsilon_0} + \dot{\mathbf{r}}_b^{(1)} \wedge \mathbf{B}_{mat} \right), \quad (5.39)$$

$$\ddot{\mathbf{r}}_b^{(3)} + \frac{1}{\tau_b} \dot{\mathbf{r}}_b^{(3)} + \omega_0^2 \mathbf{r}_b^{(3)} = b \left[ \mathbf{r}_b^{(1)} \right]^3 - \frac{e}{m} \left( \frac{\mathbf{P}_b^{(3)}}{\epsilon_0} + \dot{\mathbf{r}}_b^{(3)} \wedge \mathbf{B}_{mat} \right). \quad (5.40)$$

On obtient l'équation d'évolution des polarisations volumiques  $\mathbf{P}_b^{(1)}$  et  $\mathbf{P}_b^{(3)}$  **de la même manière que dans la section (4.2.1) et (5.2)**. On travaille dans l'espace de Fourier pour le mode  $\omega$ . En considérant l'ensemble  $N_b$  des électrons liés et en définissant la densité de charges liées  $n_b = N_b/V$ , les équations (5.39) et (5.40) deviennent :

$$\mathbf{P}_b^{(1)} = \epsilon_0 \chi_b^{(1)} \mathbf{E}_{ext} - i \xi_b \mathbf{P}_b^{(1)} \wedge \mathbf{e}_z \quad (5.41)$$

$$\mathbf{P}_b^{(3)} = \epsilon_0 \chi_b^{(3)} \mathbf{E}^3 - i \xi_b \mathbf{P}_b^{(3)} \wedge \mathbf{e}_z, \quad (5.42)$$

avec :

$$\begin{cases} \chi_b^{(1)} = \frac{n_b e^2}{m \epsilon_0 D_b(\omega)} \\ \xi_b = \frac{e \omega B_{mat}}{m D_b(\omega)} \\ \chi_b^{(3)} = \frac{3 n_b b e^4}{m^3 D_b^2(\omega) D_b(-\omega)} \end{cases}. \quad (5.43)$$

La seule différence est que la fonction de réponse des charges liées  $D_b(\omega) = \left( \omega_0^2 - \omega^2 - \frac{n_b e^2}{m \epsilon_0} + \frac{i \omega}{\tau_b} \right)$  contient un terme supplémentaire qui modifie la fréquence propre de l'oscillateur. Ce terme  $\frac{n_b e^2}{m \epsilon_0}$  peut s'écrire  $x_b \omega_p^2 = \frac{x_b n e^2}{m \epsilon_0}$  où  $\omega_p$  est la pulsation plasma,  $n$  la densité totale de charges vibrant à  $\omega_p$  et  $x_b$  la fraction d'électron lié par site atomique. En découplant les composantes  $P_{xb}^{(1)}$  et  $P_{yb}^{(1)}$  de l'équation (5.41) et  $P_{xb}^{(3)}$  et  $P_{yb}^{(3)}$  de (5.42) on écrit **la polarisation totale des charges liées** sous une forme tensorielle. En notant  $\alpha_b^{(1)} = \frac{\chi_b^{(1)}}{1 - \xi_b^2}$  et  $\alpha_b^{(3)} = \frac{\chi_b^{(3)}}{1 - \xi_b^2} (E_x^2 + E_y^2)$ ,  $\mathbf{P}_b$  s'écrit :

$$\begin{aligned} \mathbf{P}_b &= \mathbf{P}_b^{(1)} + \mathbf{P}_b^{(3)} \\ &= \epsilon_0 \left[ \chi_b^{(1)} \right] \mathbf{E} + \left[ \chi_b^{(3)} (E^2) \right] \mathbf{E} \\ &= \epsilon_0 \alpha_b^{(1)} \begin{bmatrix} 1 & -i \xi_b & 0 \\ i \xi_b & 1 & 0 \\ 0 & 0 & X \end{bmatrix} \mathbf{E} + \epsilon_0 \alpha_b^{(3)} \begin{bmatrix} 1 & -i \xi_b & 0 \\ i \xi_b & 1 & 0 \\ 0 & 0 & X \end{bmatrix} \mathbf{E}. \end{aligned} \quad (5.44)$$

Pour la **matière métallique**, l'équation différentielle des charges libres est un peu différente. On rappelle qu'il n'y a pas de force de rappel et on note  $\tau_f$  l'amortissement relatif aux charges libres. Le champ électrique dans la matière est donné par (5.36).

$$\ddot{\mathbf{r}}_f + \frac{1}{\tau_f} \dot{\mathbf{r}}_f = -\frac{e}{m} \left( \mathbf{E} + \frac{1}{\epsilon_0} \left( \mathbf{P}_b^{(1)} + \mathbf{P}_f^{(1)} + \mathbf{P}_b^{(3)} + \mathbf{P}_f^{(3)} \right) + \dot{\mathbf{r}}_f \wedge \mathbf{B}_{mat} \right). \quad (5.45)$$

Ici l'aspect non-linéaire est introduit à l'aide de la polarisation non-linéaire des charges liées  $\mathbf{P}_b^{(3)}$ . Ainsi, en écrivant  $\mathbf{r}_f(t) = \mathbf{r}_f^{(1)}(t) + \mathbf{r}_f^{(3)}(t)$  on obtient les deux équations :

$$\ddot{\mathbf{r}}_f^{(1)} + \frac{1}{\tau_f} \dot{\mathbf{r}}_f^{(1)} = -\frac{e}{m} \mathbf{E} - \frac{e}{m \epsilon_0} \left( \mathbf{P}_f^{(1)} + \mathbf{P}_b^{(1)} \right) - \frac{e}{m} \dot{\mathbf{r}}_f^{(1)} \wedge \mathbf{B}_{mat} \quad (5.46)$$

$$\ddot{\mathbf{r}}_f^{(3)} + \frac{1}{\tau_f} \dot{\mathbf{r}}_f^{(3)} = -\frac{e}{m \epsilon_0} \left( \mathbf{P}_b^{(3)} + \mathbf{P}_f^{(3)} \right) - \frac{e}{m} \dot{\mathbf{r}}_f^{(3)} \wedge \mathbf{B}_{mat}. \quad (5.47)$$

En sommant sur les  $N_f$  électrons libres dans l'espace de Fourier, les équations (5.46) et (5.47) donnent

$$\mathbf{P}_f^{(1)} = \epsilon_0 \chi_f^{(1)} \mathbf{E} - i \xi_f \mathbf{P}_f^{(1)} \wedge \mathbf{e}_z + \chi_f^{(1)} \mathbf{P}_b^{(1)} \quad (5.48)$$

$$\mathbf{P}_f^{(3)} = \chi_f^{(1)} \mathbf{P}_b^{(3)} - i \xi_f \mathbf{P}_f^{(3)} \wedge \mathbf{e}_z, \quad (5.49)$$

avec :

$$\begin{cases} \chi_f^{(1)} = \frac{n_f e^2}{m D_f(\omega) \epsilon_0} \\ \xi_f = \frac{i e \omega B_{mat}}{m D_f(\omega)} \end{cases}, \quad (5.50)$$

et où  $\mathbf{P}_b^{(1)}$  et  $\mathbf{P}_b^{(3)}$  sont donnés par (5.44). La fonction de réponse des charges libres est  $D_f(\omega) = \left(-\omega^2 - \frac{n_f e^2}{m \epsilon_0} + \frac{i \omega}{\tau_f}\right)$  où on écrira  $\frac{n_f e^2}{m \epsilon_0} = x_f \omega_p^2$ . La différence avec les équations (5.41) et (5.42) et **la présence de termes supplémentaires dus au couplage avec la réponse des charges liées  $\mathbf{P}_b^{(1)}$  et  $\mathbf{P}_b^{(3)}$** . Tenant compte de leurs expressions données par (5.44) la projection de l'équation (5.48) sur les composantes  $P_{xf}^{(1)}$  et  $P_{yf}^{(1)}$  et celle de (5.49) sur les composantes  $P_{xf}^{(3)}$  et  $P_{yf}^{(3)}$  donnent les systèmes d'équations couplées :

$$\begin{cases} P_{xf}^{(1)} = \epsilon_0 \chi_f^{(1)} E_x - i \xi_f P_{yf}^{(1)} + \chi_f^{(1)} \epsilon_0 \alpha_b (E_x - i \xi_b E_y) \\ P_{yf}^{(1)} = \epsilon_0 \chi_f^{(1)} E_y + i \xi_f P_{xf}^{(1)} + \chi_f^{(1)} \epsilon_0 \alpha_b (E_y + i \xi_b E_x) \end{cases}, \quad (5.51)$$

$$\begin{cases} P_{xf}^{(3)} = \epsilon_0 \chi_f^{(1)} \alpha_b'^{(3)} (E_x - i \xi_b E_y) - i \xi_f P_{yf}^{(3)} \\ P_{yf}^{(3)} = \epsilon_0 \chi_f^{(1)} \alpha_b'^{(3)} (E_y + i \xi_b E_x) + i \xi_f P_{xf}^{(3)} \end{cases}. \quad (5.52)$$

En découplant les équations on obtient **la polarisation totale des charges libres** :

$$\begin{aligned} \mathbf{P}_f &= \mathbf{P}_f^{(1)} + \mathbf{P}_f^{(3)} \\ &= \epsilon_0 \left[ \chi_f^{(1)} \right] \mathbf{E} + \epsilon_0 \left[ \chi_f^{(3)} (E^2) \right] \mathbf{E}. \end{aligned}$$

Le terme  $\mathbf{P}_f^{(1)}$  contient deux contributions :

$$\mathbf{P}_f^{(1)} = \epsilon_0 \alpha_f \begin{bmatrix} 1 & -i \xi_f & 0 \\ i \xi_f & 1 & 0 \\ 0 & 0 & X \end{bmatrix} \mathbf{E} + \epsilon_0 \alpha_b \alpha_f \begin{bmatrix} (1 + \xi_b \xi_f) & -i(\xi_b + \xi_f) & 0 \\ i(\xi_b + \xi_f) & (1 + \xi_b \xi_f) & 0 \\ 0 & 0 & X \end{bmatrix} \mathbf{E}, \quad (5.53)$$

la première représentant le tenseur de conductivité et une deuxième induite par la polarisation des charges liées, où  $\alpha_f^{(1)} = \frac{\chi_f^{(1)}}{1 - \xi_f^2}$ . La polarisation non-linéaire du troisième ordre  $\mathbf{P}_f^{(3)}$  induite par la non-linéarité des charges liées s'écrit :

$$\mathbf{P}_f^{(3)} = \epsilon_0 \alpha_f \alpha_b'^{(3)} \begin{bmatrix} (1 + \xi_f \xi_b) & -i(\xi_f + \xi_b) & 0 \\ i(\xi_f + \xi_b) & (1 + \xi_f \xi_b) & 0 \\ 0 & 0 & X \end{bmatrix} \mathbf{E}. \quad (5.54)$$

On peut à présent déterminer l'expression des éléments du tenseur  $[\epsilon']$  en réalisant l'identification suivante :

$$\begin{aligned} \mathbf{D} &= \epsilon_0 \left( 1 + \left[ \chi_b^{(1)} \right] + \left[ \chi_f^{(1)} \right] + \left[ \chi_b^{(3)} (E^2) \right] + \left[ \chi_f^{(3)} (E^2) \right] \right) \mathbf{E} \\ &= \epsilon_0 \begin{bmatrix} \epsilon_{xx} + \epsilon_{xxxx} (E_x^2 + E_y^2) & \epsilon_{xy} + \epsilon_{xxxy} (E_x^2 + E_y^2) & 0 \\ -(\epsilon_{xy} + \epsilon_{xxxy} (E_x^2 + E_y^2)) & \epsilon_{xx} + \epsilon_{xxxx} (E_x^2 + E_y^2) & 0 \\ 0 & 0 & X \end{bmatrix} \mathbf{E}. \end{aligned} \quad (5.55)$$

A l'aide des expressions (5.44), (5.53) et (5.54) et en notant  $\alpha_b^{(3)} = \alpha_b^{(3)}(E_x^2 + E_y^2)$  les composantes du tenseur de permittivité diélectrique s'écrivent :

$$\begin{aligned}\epsilon_{xx} &= 1 + \alpha_b^{(1)} + \alpha_f + \alpha_f \alpha_b^{(1)}(1 + \xi_b \xi_f) \\ \epsilon_{xy} &= -i \left( \xi_b \alpha_b^{(1)} + \xi_f \alpha_f + \alpha_b^{(1)} \alpha_f (\xi_b + \xi_f) \right) \\ \epsilon_{xxxx} &= \alpha_b^{(3)} + \alpha_b^{(3)} \alpha_f (1 + \xi_b \xi_f) \\ \epsilon_{xxxy} &= -i (\xi_b \alpha_b^{(3)} + \alpha_b^{(3)} \alpha_f (\xi_b + \xi_f)).\end{aligned}\quad (5.56)$$

On rappelle les expressions de tous les termes utilisés **afin de préciser quelles sont les paramètres physiques qui entrent en compte dans la modélisation**. Avec les notations précédentes, la composante isotrope du premier ordre  $\epsilon_{xx}$  s'écrit en détail :

$$\begin{aligned}\epsilon_{xx} &= 1 + \alpha_b^{(1)} + \alpha_f + \alpha_f \alpha_b^{(1)}(1 + \xi_b \xi_f) \\ &= 1 + \frac{\chi_b}{1 - \xi_b^2} + \frac{\chi_f}{1 - \xi_f^2} + \frac{\chi_b \chi_f (1 + \xi_b \xi_f)}{(1 - \xi_b^2)(1 - \xi_f^2)}.\end{aligned}$$

Les termes  $\chi_b$ ,  $\chi_f$ ,  $\xi_b$  et  $\xi_f$  dépendent des fonctions de réponse fréquentielles  $D_b(\omega)$  et  $D_f(\omega)$  et de la pulsation plasma où  $\omega_p$  est définie selon  $\omega_p^2 = \frac{n e^2}{m \epsilon_0}$  et  $n$  est la densité volumique de charge totale qui vibrent à cette pulsation. On suppose ensuite que  $n_b = x_b * n$  et  $n_f = x_f * n$ .

$$\begin{aligned}\xi_b &= \frac{e \omega B_{mat}}{D_b(\omega) m} & \chi_b &= \frac{x_b \omega_p^2}{D_b(\omega)} & D_b(\omega) &= \left( \omega_0^2 - x_b \omega_p^2 - \omega^2 + \frac{i \omega}{\tau_b} \right) \\ \xi_f &= \frac{e \omega B_{mat}}{D_f(\omega) m} & \chi_f &= \frac{x_f \omega_p^2}{D_f(\omega)} & D_f(\omega) &= \left( -\omega^2 - x_f \omega_p^2 + \frac{i \omega}{\tau_f} \right).\end{aligned}$$

Toutes ces fonctions peuvent être déterminées par les valeurs des constantes fondamentales et celles des paramètres physiques qui modélisent le nickel. Dès lors qu'elles sont définies on peut calculer  $\epsilon_{xx}$  et  $\epsilon_{xy}$ . Il reste à détailler l'expression de  $\alpha_b^{(3)}$  pour calculer  $\epsilon_{xxxx}$  et  $\epsilon_{xxxy}$  :

$$\alpha_b^{(3)} = \frac{3 n_b e^4 b}{m^3 \epsilon_0 D_b^3(\omega) D_b(-\omega) (1 - \xi_b^2)}.$$

Le paramètre  $b$  représente **l'intensité de la réponse anharmonique**. Il se détermine en supposant que l'intensité de la réponse harmonique  $m \omega_0^2 r$  est du même ordre de grandeur que l'intensité de la réponse anharmonique  $m b r^3$  lorsque l'élongation  $r$  atteint la distance entre plus proches voisins  $a_r$  dans la maille cristalline [91]. Ainsi :

$$m \omega_0^2 a_r \approx m b a_r^3 \quad \Rightarrow \quad b \approx \frac{\omega_0^2}{a_r^2}.$$

L'expression précise de  $\alpha_b^{(3)}$  est :

$$\begin{aligned}\alpha_b^{(3)} &= \frac{3 n_b e^2 \omega_0^2 e^2}{m \epsilon_0 a_r^2 m^2} \frac{1}{D_b^3(\omega) D_b(-\omega) (1 - \xi_b^2)} \\ &= \frac{3 x_b \omega_p^2 \omega_0^2 e^2}{a_r^2 m^2} \frac{1}{D_b^3(\omega) D_b(-\omega) (1 - \xi_b^2)}.\end{aligned}$$

Ainsi, pour calculer la réponse magnéto-optique non-linéaire du nickel, il faut déterminer les valeurs de  $\omega_0$ ,  $\omega_p$ ,  $\tau_b$ ,  $\tau_f$ ,  $a_r$  et  $B_{mat}$ .

## 5.5 Confrontation aux résultats expérimentaux

On cherche à comparer les évolutions de la rotation normalisée  $\theta/\theta^{min}$  et de l'ellipticité normalisée  $\eta/\eta^{min}$  en fonction de l'énergie absorbée  $E_{abs}$  de la figure 5.3 avec celles calculées par la modélisation précédente où  $\theta$  et  $\eta$  représentent la partie réelle et imaginaire de la phase Faraday  $\phi_F$  :

$$\phi_F = \frac{\omega_l d}{2c} (n_+ - n_-) \equiv \theta + i\eta \quad \left\{ \begin{array}{l} \frac{\theta}{\theta^{min}} \equiv \frac{\theta(E_{abs})}{\theta(E_{abs}^{min})} = \frac{Re[\phi_F(E_{abs})]}{Re[\phi_F(E_{abs}^{min})]} \\ \frac{\eta}{\eta^{min}} \equiv \frac{\eta(E_{abs})}{\eta(E_{abs}^{min})} = \frac{Im[\phi_F(E_{abs})]}{Im[\phi_F(E_{abs}^{min})]} \end{array} \right. .$$

Les quantités  $n_{\pm}$  sont données par les formules des indices optiques non-linéaires obtenues en section (5.3). On réalise en premier lieu la modélisation avec la formule déterminée en section (5.3.1) :

$$n_{\pm}^2 \approx \epsilon_{xx} + 2\epsilon_{xxxx}E^2 \pm i(\epsilon_{xy}^2 - 4\epsilon_{xxy}E^4)^{1/2}, \quad (5.57)$$

puis on refait l'étude avec l'expression obtenue en section (5.3.2) :

$$n_{\pm}^2 \approx (\epsilon_{xx} + \epsilon_{xy}\lambda_{MO}) + 2(\epsilon_{xxxx} + \epsilon_{xxy}\lambda_{MO})E^2 \pm i\left((\epsilon_{xy} - \epsilon_{xx}\lambda_{MO})^2 - 4(\epsilon_{xxy} - \epsilon_{xxxx}\lambda_{MO})^2 E^4\right)^{1/2}. \quad (5.58)$$

Cette **distinction** permet d'étudier l'**influence du paramètre magnéto-optique**  $\lambda_{MO}$ . Dans la section (5.5.1) on donne les valeurs des paramètres physiques intervenant dans les fonctions diélectriques du nickel et on explique comment estimer la valeur du champ magnétique du matériau  $B_{mat}$ . La section (5.5.2) est consacrée à l'étude de (5.57) et la section (5.5.3) à celle de (5.58).

### 5.5.1 Paramétrage

On rappelle que la durée de l'impulsion laser est de 48 fs et qu'elle est *approximée par une onde plane* de pulsation  $\omega_l = \frac{2\pi c}{\lambda_l} = 2.36 * 10^{15}$  rad/s. L'épaisseur du film de Nickel est de 7.5 nm. L'énergie absorbée  $E_{abs}$  et l'amplitude du champ électrique  $E$  sont reliées selon la relation :

$$E = \sqrt{\frac{2 * 10 * E_{abs}(\text{mJ/cm}^2)}{0.388 * 48.10^{-15}(\text{s}) * c * \epsilon_0}}. \quad (5.59)$$

Il nous faut préciser les paramètres physiques dans les fonctions de réponse diélectrique  $\omega_0$ ,  $\omega_p$ ,  $a_r$ ,  $\tau_b$ ,  $\tau_f$  et  $B_{mat}$ . La pulsation de la force de rappel  $\omega_0$  est considérée comme étant la pulsation associée à l'énergie  $\hbar\omega_0$  de transition entre deux niveaux. On suppose que les électrons liés sont des électrons 3d qui transitent vers le niveau 4s. Dans [61], P. Argyres donne un ordre de grandeur de la transition  $\hbar\omega_0 = 4$  eV ce qui correspond à  $\omega_0 = 6.079 * 10^{15}$  rad/s. Pour la pulsation plasma on trouve dans les tables [75]  $\hbar\omega_p = 4.9$  eV soit  $\omega_p = 7.447 * 10^{15}$  rad/s. La distance inter-atomique  $a_r$  est calculée à l'aide du paramètre de maille  $a$  du nickel qui cristallise dans un *réseau cfc*. Avec la masse atomique  $M_{Ni} = 58.69$  g/mol, la masse volumique  $\rho = 8.902$  g/cm<sup>3</sup>, le nombre d'Avogadro  $N_a$  et la relation  $\rho = 4M_{Ni}/(N_a * a^3)$  on détermine  $a = 3.51 * 10^{-10}$  m. Dans une maille cfc la distance au plus proche voisin est donnée par  $a_r = \sqrt{2} * a/2 = 2.48 * 10^{-10}$  m. On estime les valeurs de  $\tau_f$  et  $\tau_b$  à  $10^{-14}$  s et  $10^{-13}$  s.

$$\left\{ \begin{array}{l} \hbar\omega_0 = 4\text{eV} \\ \hbar\omega_p = 4.9\text{eV} \\ \omega_l = 2.36 * 10^{15}\text{rad/s} \end{array} \right\} \quad \left\{ \begin{array}{l} \tau_b = 10^{-13}\text{s} \\ \tau_f = 10^{-14}\text{s} \\ a_r = 2.48 * 10^{-10}\text{m} \end{array} \right\} \quad \left\{ \begin{array}{l} d = 7.5\text{nm} \\ \Delta t = 48 * 10^{-15}\text{s} \\ x_b = 0.6 \end{array} \right\}$$

Pour estimer  $B_{mat}$  qui correspond au **champ magnétique effectif dans le matériau** on choisit de tracer les valeurs de  $\theta$  et de  $\eta$  pour l'énergie minimum en fonction de la grandeur  $B_{mat}$  et de regarder

l'intersection des courbes théoriques avec les valeurs expérimentales  $\theta_{exp}^{min}$  et  $\eta_{exp}^{min}$ . D'après les auteurs de [8] elles valent :

$$\begin{cases} \theta_{exp}^{min} = 7\text{mrad} \\ \eta_{exp}^{min} = 9.7\text{mrad} \end{cases} .$$

Pour tenir compte de la structure de bande du nickel, on réalise l'étude pour **différentes masses effectives  $m_{eff}$  de l'électron** comprise entre  $m_e$  et  $0.2m_e$ . *Il nous a été difficile d'évaluer la masse effective réelle d'un électron du nickel, même après discussions avec des spécialistes en modélisation de la structure électronique des matériaux.*

### Résultats du paramétrage pour l'angle de rotation $\theta$

On voit sur la figure 5.7, pour  $m_{eff}/m_e = 1$ , que la courbe  $\theta_{th}$  coupe la valeur de  $\theta_{exp}$  pour une valeur de  $B_{mat} = 3500$  T. On retrouve l'ordre de grandeur du champ effectif dans les ferromagnétiques pour la rotation  $\theta_{th}$  bien que la valeur de 3500 T soit trop élevée pour le nickel (500 T [73]).

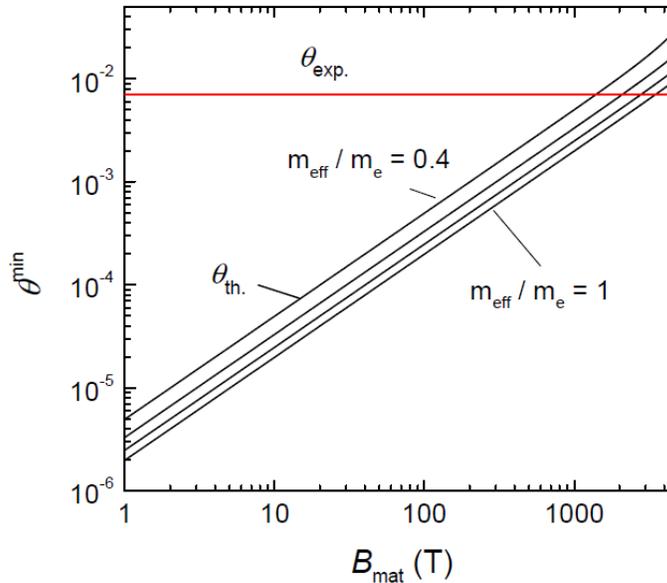


FIG. 5.7 – Intersection des valeurs théoriques  $\theta_{th}$  pour différents rapports  $m_{eff}/m_e$  avec la valeur expérimentale  $\theta_{exp}$

On réalise la même étude pour des rapports  $m_{eff}/m_e$  égaux à 0.8, 0.6 et 0.4. On constate, que pour des **masses effectives plus faibles, le champ magnétique du matériau**, nécessaire pour retrouver la valeur expérimentale, **diminue** vers des valeurs plus raisonnables.

### Résultats du paramétrage pour l'angle d'ellipticité $\eta$

La procédure précédente est appliquée pour l'angle d'ellipticité  $\eta$ . Les résultats sont exposés sur le figure 5.8. On remarque que la modélisation de l'ellipticité  $\eta_{th}$  **n'est pas satisfaisante**, les courbes  $\eta_{th}(m_{eff}/m_e)$  qui amorcent un profil non-linéaire avec le champ magnétique croiseraient  $\eta_{exp}$  pour des valeurs du champ magnétique bien trop élevées.

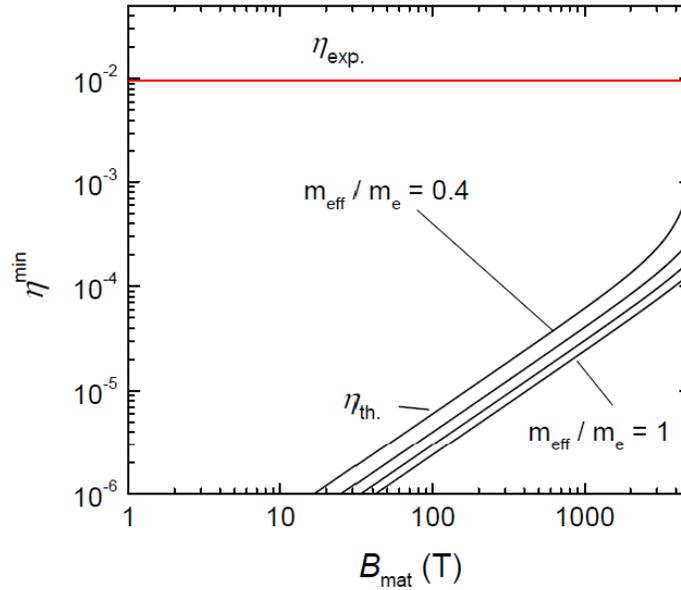


FIG. 5.8 – Intersection des valeurs théoriques  $\eta_{th}$  pour différents rapports  $m_{eff}/m_e$  avec la valeur expérimentale  $\eta_{exp}$

En effet, l'angle  $\eta$  d'ellipticité est liée à l'absorption de l'énergie de l'impulsion laser par l'échantillon, et la description classique utilisée avec les modèles de Drude-Voigt n'est évidemment pas la plus adéquate pour rendre compte d'un phénomène aussi complexe. Dans ces modèles, le phénomène d'absorption est décrit de façon phénoménologique par les temps caractéristiques d'amortissement  $\tau_b$  et  $\tau_f$ . L'estimation de la valeur de ces paramètres par  $\tau_b \approx 10^{-13}$  s et  $\tau_f \approx 10^{-14}$  s est réaliste dans les domaines d'optique linéaire mais plus dans les régimes non-linéaires pour lesquels ces temps d'amortissements peuvent dépendre du champ électrique excitateur et d'une corrélation forte entre les particules.

#### Choix pour décrire le champ magnétique du matériau

On peut conclure de ces deux études préliminaires qu'il vaut mieux choisir une valeur du champ magnétique du matériau à partir de l'étude réalisée avec l'angle de rotation  $\theta$ . On peut voir dans le tableau ci-dessous les différents champs magnétiques à paramétrer dans le code de calcul selon la valeur de la masse effective de l'électron que l'on choisit.

$m_{eff}/m_e$	1	0.9	0.8	0.7	0.6	0.5	0.4	0.3
$B_{mat}(T)$	3480	3131	2784	2435	2086	1739	1391	1044

La corrélation entre la masse effective et le champ magnétique du matériau est linéaire comme on peut le voir sur la figure 5.9 :

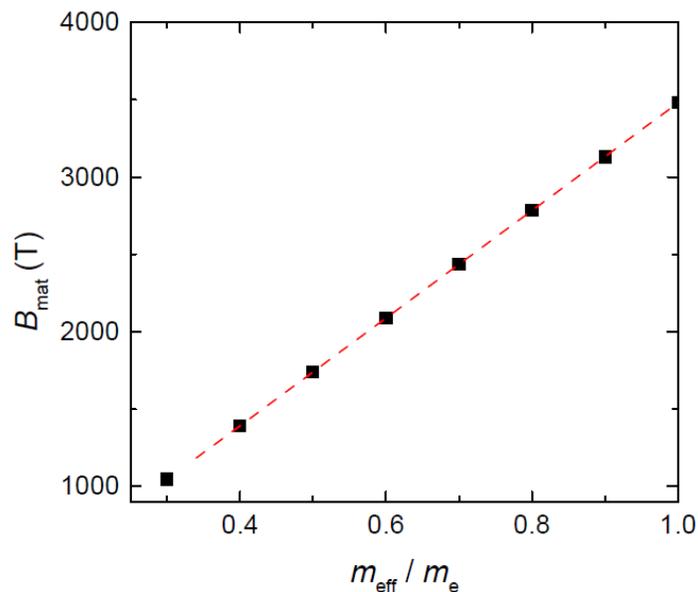


FIG. 5.9 – Champ magnétique associé aux différentes masses effectives.

### 5.5.2 Résultats

On trace les angles de rotation et d'ellipticité normalisés  $\theta/\theta_{\min}$  et  $\eta/\eta_{\min}$  en fonction de l'énergie absorbée. Une première étude est réalisée pour  $m_{\text{eff}}/m_e = 1$  pour différents rapports entre les populations de charges libres et de charges liées (Figure 5.10) .

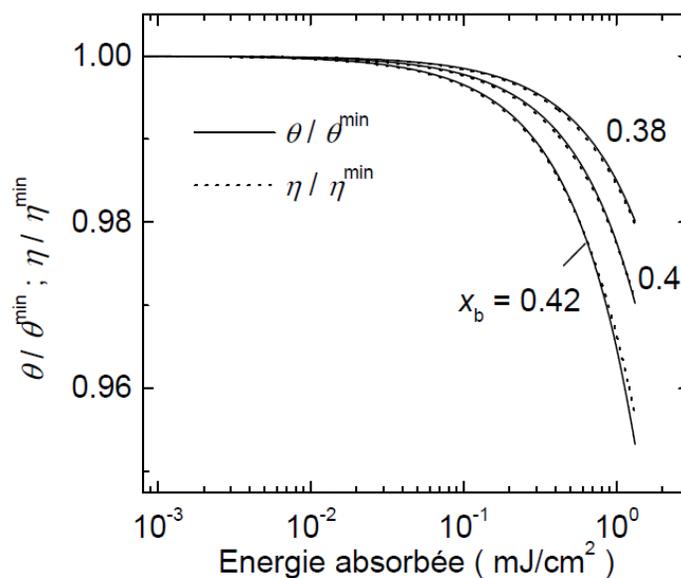


FIG. 5.10 –  $\theta/\theta^{\min}$  et  $\eta/\eta^{\min}$  pour  $m_{\text{eff}}/m_e = 1$ ,  $x_b = 0.4$ ,  $x_b = 0.38$  et  $x_b = 0.42$

Sur la figure 5.10 les courbes  $\theta/\theta_{min}$  et  $\eta/\eta_{min}$  pour  $x_b = 0.4$  sont superposées et atteignent la valeur de 0.97 pour  $E_{abs} = 1 \text{ mJ/cm}^2$  bien plus faible que la valeur expérimentale de 0.7. On regarde alors l'évolution des paramètres magnéto-optique en fonction des populations de charges libres et liées pour  $x_b = 0.38$  et  $x_b = 0.42$ . Elles conduisent respectivement à des valeurs de 0.98 et 0.95. **On choisit ensuite de mener une étude distincte pour la rotation et l'ellipticité normalisées pour  $x_b = 0.4$  et de superposer les courbes théoriques avec les courbes expérimentales.**

#### Etude de la rotation normalisée $\theta/\theta_{min}$ en fonction de l'énergie absorbée $E_{abs}$

On trace la rotation normalisée pour différents rapports  $m_{eff}/m_e$ . On rappelle que pour chaque simulation, le choix d'une valeur de masse effective donnée impose de modifier la valeur paramétrée du champ magnétique du matériau (cf tableau précédent). On peut voir sur la figure 5.11 l'évolution de  $\theta/\theta_{min}$  en fonction de l'énergie absorbée pour des rapports  $m_{eff}/m_e$  égaux à 1, 0.6, 0.4 et 0.3.

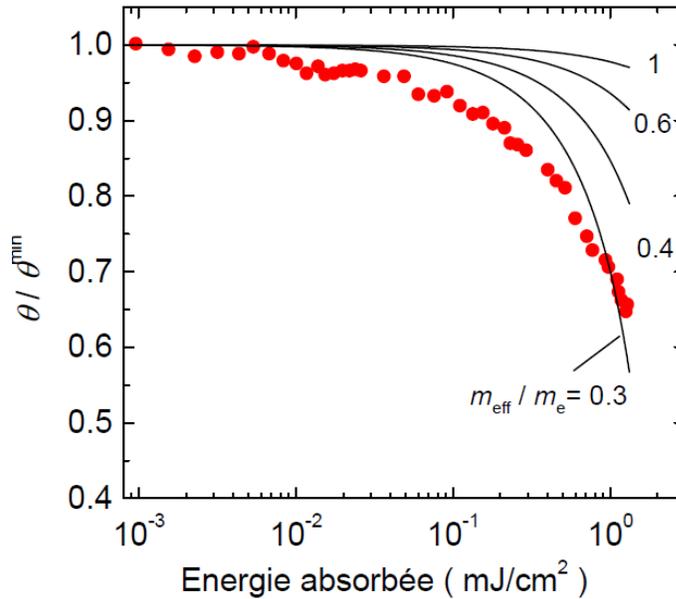


FIG. 5.11 – Angle de rotation normalisé pour différents rapports  $m_{eff}/m_e$  ( $x_b = 0.4$ ). Les points représentent les mesures expérimentales de [8].

On peut faire les commentaires suivants :

- On constate que la rotation normalisée  $\theta/\theta_{min}$  est d'autant plus faible que le rapport  $m_{eff}/m_e$  diminue.
- L'apparition du régime non-linéaire est identique pour les quatre courbes correspondant aux quatre valeurs de  $m_{eff}/m_e$ , et semble correspondre au point de décrochement observé sur la courbe expérimentale.
- On peut préciser que les valeurs théoriques restent supérieures aux valeurs expérimentales jusqu'à la valeur particulière  $m_{eff}/m_e = 0.3$ .

### Etude de l'ellipticité normalisée $\eta/\eta_{min}$ en fonction de l'énergie absorbée $E_{abs}$

On réalise la même étude pour l'ellipticité normalisée  $\eta/\eta_{min}$  avec  $x_b = 0.4$  et des rapports  $m_{eff}/m - e$  égaux à 1, 0.6, 0.4 et 0.3. Les résultats sont exposés sur la figure 5.12.

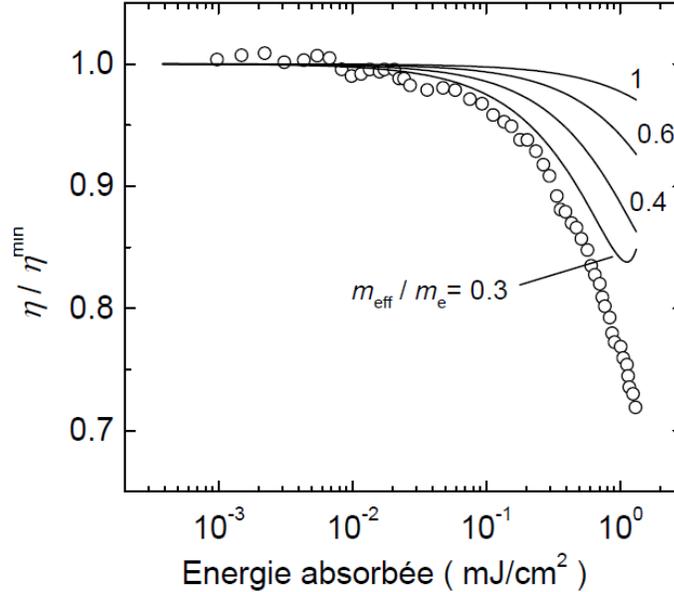


FIG. 5.12 – Angle d'ellipticité normalisé pour différents rapports  $m_{eff}/m_e$  ( $x_b = 0.4$ ). Les points représentent les mesures expérimentales de [8].

On trouve des point communs et des différences avec les résultats obtenus pour l'angle de rotation :

- L'ellipticité normalisée  $\eta/\eta_{min}$  est d'autant plus faible que le rapport  $m_{eff}/m_e$  diminue.
- Les valeurs théoriques sont toutes supérieures aux valeurs expérimentales. On constate à nouveau que la valeur  $m_{eff}/m = 0.3$  est singulière car la courbe associée  $\eta/\eta_{min}$  semble devenir croissante à partir de  $E_{abs} = 1 \text{ mJ/cm}^2$ .
- En revanche, l'apparition du régime non-linéaire pour les quatre courbes théoriques semble en bonne adéquation avec celle observée pour la courbe expérimentale.

### 5.5.3 Contribution du courant magnéto-optique

On reprend l'étude précédente mais en utilisant la formule obtenue en section (5.3.2) qui incorpore un aspect magnéto-optique lié à l'interaction spin-orbite :

$$n_{\pm}^2 \approx (\epsilon_{xx} + \epsilon_{xy}\lambda_{MO}) + 2(\epsilon_{xxx} + \epsilon_{xxy}\lambda_{MO}) E^2 \pm i \left( (\epsilon_{xy} - \epsilon_{xx}\lambda_{MO})^2 - 4(\epsilon_{xxy} - \epsilon_{xxx}\lambda_{MO})^2 E^4 \right)^{1/2}.$$

Pour continuer, il faut cependant préciser le paramètre  $\lambda_{MO}$  dont on rappelle l'expression :

$$\lambda_{MO} = \frac{i\alpha M_z}{\omega\epsilon_0} = -\frac{eiM_z}{2mc^2\omega\epsilon_0}.$$

Ce dernier terme comporte l'aimantation  $M_z$  et le modèle que l'on utilise, le champ effectif dans le matériau  $B_{mat}$ . On fait l'hypothèse simple que ces deux quantités sont reliées par la relation suivante :

$$B_{mat} = \mu_0 M_z.$$

Ainsi on peut écrire :

$$\lambda_{MO} = -\frac{eiM_z}{2mc^2\omega\epsilon_0} = -\frac{eiB_{mat}}{2m\omega(c^2\mu_0\epsilon_0)} = -\frac{i}{2} \frac{eB_{mat}}{m\omega} = -\frac{i\omega_B}{2\omega}. \quad (5.60)$$

En notant  $\omega_B = \frac{eB_{mat}}{m}$  la pulsation cyclotron associée au champ magnétique interne, on constate que le rapport magnéto-optique  $\lambda_{MO}$  illustre une compétition entre l'échelle de temps imposée par le champ magnétique  $\omega_B$  et l'échelle de temps associée à la pulsation du champ électromagnétique du laser  $\omega$ .

### Résultats du paramétrage pour l'angle de rotation $\theta$ avec le paramètre magnéto-optique $\lambda_{MO}$ .

On trace à nouveau  $\theta_{th}$  pour la valeur à l'énergie minimum en fonction de  $B_{mat}$  et on regarde l'intersection avec la valeur expérimentale  $\theta_{exp}$ . L'étude est réalisée pour les rapports  $m_{eff}/m_e$  égaux à 1, 0.8, 0.6 et 0.4 et les résultats sont présentés sur la figure 5.13.

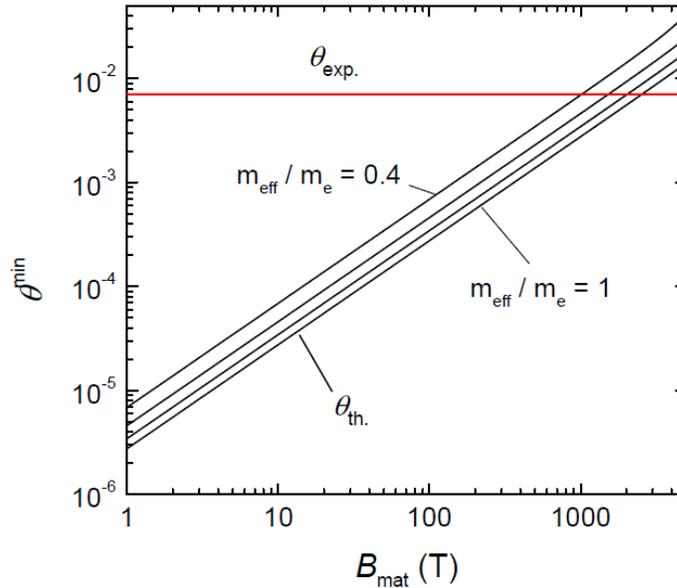


FIG. 5.13 – Intersection des valeurs théoriques  $\theta_{th}$  pour différents rapports  $m_{eff}/m_e$  avec la valeur expérimentale  $\theta_{exp}$  en présence du paramètre magnéto-optique  $\lambda_{MO}$

On constate qu'en incorporant le paramètre magnéto-optique  $\lambda_{MO}$ , les valeurs de  $B_{mat}$  nécessaires

pour obtenir la valeur expérimentale de l'angle de rotation sont plus faibles que dans le cas  $\lambda_{MO} = 0$  (voir tableau plus bas) et se rapprochent de la valeur estimée à 500 T pour le Nickel.

**Résultats du paramétrage pour l'angle d'ellipticité  $\eta$  avec le paramètre magnéto-optique  $\lambda_{MO}$**

La procédure est également réalisée pour l'ellipticité; on peut voir les résultats sur la figure 5.14 ci dessous :

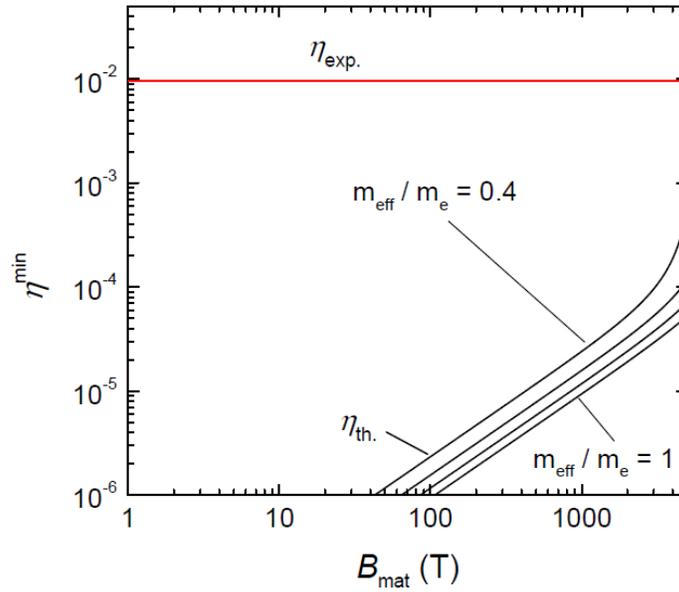


FIG. 5.14 – Intersection des valeurs théoriques  $\eta_{th}$  pour différents rapports  $m_{eff}/m_e$  avec la valeur expérimentale  $\eta_{exp}$  en présence du paramètre magnéto-optique  $\lambda_{MO}$ .

On constate également que la modélisation de l'ellipticité n'est pas satisfaisante car les valeurs de champ magnétique nécessaires pour obtenir  $\eta_{exp}$  sont toujours bien trop élevées. Comme précédemment on choisit de **paramétrer la valeur du champ magnétique avec les résultats obtenus dans le cas de la rotation**. On peut voir dans le tableau ci-dessous les différentes valeurs de  $B_{mat}$  qu'il faut choisir selon la valeur de la masse effective utilisée.

$m_{eff}/m_e$	1	0.9	0.8	0.7	0.6	0.5	0.4	0.3
$B_{mat}(T)$	2527	2275	2022	1769	1517	1264	1011	759

On constate qu'elles sont bien plus faibles que dans l'étude réalisée sans le paramètre magnéto-optique. La corrélation entre champ magnétique et masse effective est toujours linéaire comme on peut le voir sur la figure 5.15.

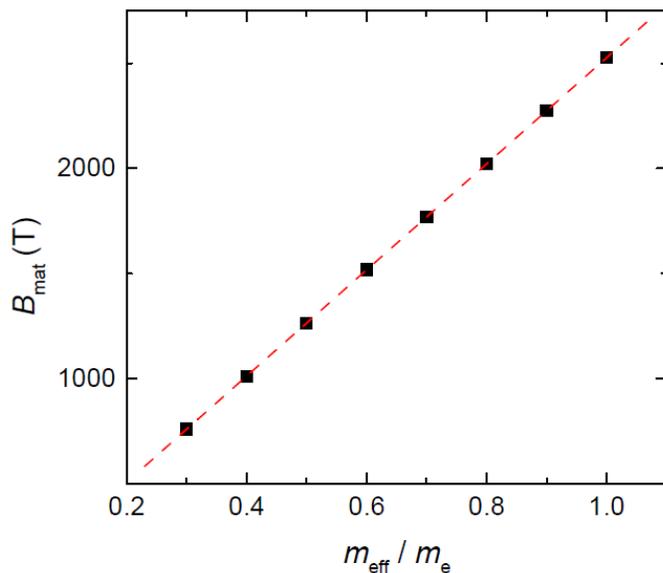


FIG. 5.15 – Champs magnétiques associés aux différentes masses effectives avec  $\lambda_{MO}$ .

#### Etude de la rotation normalisée $\theta/\theta_{min}$ en fonction de l'énergie absorbée $E_{abs}$ ( $\lambda_{MO} \neq 0$ )

On peut voir sur la figure 5.16 l'évolution de  $\theta/\theta_{min}$  en fonction de l'énergie absorbée pour des rapports  $m_{\text{eff}}/m_e$  égaux à 1, 0.6, 0.4 et 0.3.

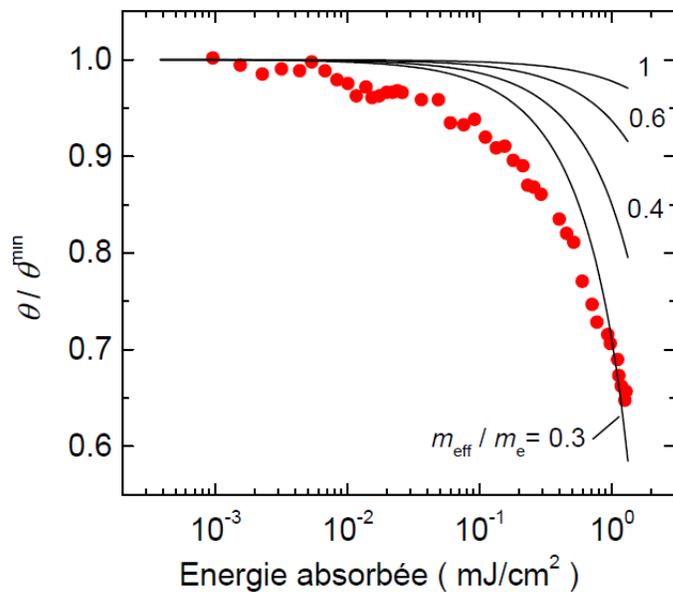


FIG. 5.16 – Angle de rotation normalisé pour différents rapports  $m_{\text{eff}}/m_e$  avec  $\lambda_{MO} \neq 0$ .

On constate qu'il n'y a quasiment pas de différence avec le cas précédent. L'incorporation du paramètre magnéto-optique modifie les valeurs de la rotation normalisée mais puisqu'il impose d'utiliser un champ magnétique plus faible, les effets sont compensés.

#### Etude de l'ellipticité normalisée $\eta/\eta_{min}$ en fonction de l'énergie absorbée $E_{abs}$ ( $\lambda_{MO} \neq 0$ )

On peut voir sur la figure 5.17 les modifications apportées par le paramètre magnéto-optique sur l'ellipticité normalisée  $\eta/\eta_{min}$  pour des rapports  $m_{eff}/m_e$  égaux à 1, 0.6 et 0.4.

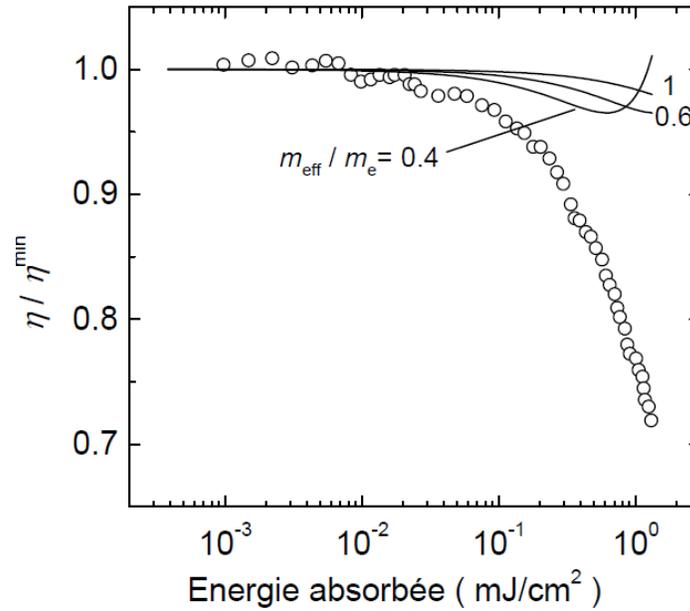


FIG. 5.17 – Angle d'ellipticité normalisé pour différents rapports  $m_{eff}/m_e$  avec  $\lambda_{MO} \neq 0$ .

Les modifications sont beaucoup plus nettes que dans le cas de l'angle de rotation. On constate que les valeurs de l'ellipticité normalisée  $\eta/\eta_{min}$  sont beaucoup plus faibles avec le paramètre magnéto-optique  $\lambda_{MO}$  que celles obtenues sans. Pour la valeur  $m_{eff}/m_e = 0.4$  la courbe est décroissante puis croissante. **Les résultats de la modélisation ne sont donc clairement pas satisfaisants pour cette observable.**

#### 5.5.4 Analyses et critiques

On réalise à présent un bilan des résultats de la modélisation précédente. On présente les points positifs et négatifs et on propose quelques pistes pour améliorer le modèle.

- Le point important est que **l'allure non-linéaire des courbes théoriques semble suivre celles des courbes expérimentales**. Malgré les écarts significatifs entre les deux courbes, la formule mathématique des indices optiques non-linéaires :

$$n_{\pm}^2 \approx \epsilon_{xx} + 2\epsilon_{xxxx}E^2 \pm i(\epsilon_{xy}^2 - 4\epsilon_{xxxy}^2E^4)^{1/2},$$

est relativement bien adaptée pour décrire un phénomène anisotrope non-linéaire.

- Bien que la description classique du problème soit un peu légère pour rendre compte des propriétés du nickel, la modélisation des paramètres magnéto-optiques donne des **résultats intéressants pour le paramètre de rotation  $\theta$** . En se plaçant à l'énergie minimum et avec une valeur du champ magnétique du matériau de l'ordre de grandeur de celui rencontré dans les ferromagnétiques, **on trouve l'ordre de grandeur de l'angle de rotation mesuré expérimentalement  $\theta_{exp}$** .
- En revanche, la modélisation n'est **pas satisfaisante pour le paramètre d'ellipticité  $\eta$**  qui donne des résultats deux ordres de grandeur en dessous de la valeur expérimentale  $\eta_{exp}$ . La **modélisation classique** des fonctions de réponses semble être **inadaptée** pour décrire correctement les **phénomènes d'absorption**, surtout dans les régimes non-linéaires.
- Il peut-être intéressant de reprendre l'étude en modélisant les fonctions de réponses à partir d'une théorie quantique.
- La formule mathématique des indices optiques non-linéaires **avec le paramètre magnéto-optique** :

$$n_{\pm}^2 \approx (\epsilon_{xx} + \epsilon_{xy}\lambda_{MO}) + 2(\epsilon_{xxxx} + \epsilon_{xxxy}\lambda_{MO})E^2 \\ \pm i \left( (\epsilon_{xy} - \epsilon_{xx}\lambda_{MO})^2 - 4(\epsilon_{xxxy} - \epsilon_{xxxx}\lambda_{MO})^2 E^4 \right)^{1/2},$$

apporte des **renseignements intéressants**. En ajoutant la correction magnéto-optique (provenant de l'interaction spin-orbite) on voit que le **champ magnétique du matériau** qu'il faut considérer est plus faible et se **rapproche des valeurs tabulées** pour le nickel.

- Les écarts entre résultats théoriques et expérimentaux peuvent s'expliquer par le fait qu'il **manque à ce modèle un paramètre** très important pour décrire un effet Faraday non-linéaire : **la dynamique d'aimantation**. L'étude a été réalisée ici à aimantation constante, ce qui n'a pas trop de sens dans une thématique de perte d'aimantation. Il est possible d'incorporer une dynamique d'aimantation dans ce modèle, mais il faut au préalable choisir un mécanisme. La problématique de la dynamique d'aimantation est abordée dans le sixième et dernier chapitre.
- La modélisation apporte également des renseignements sur le **rôle joué par les charges**. En effet, il est difficile de savoir quelle est la part réelle de la chute d'aimantation dans le signal expérimental mesuré. Le modèle précédent permettrait éventuellement de s'en faire une idée mais il faudrait pouvoir être sûr de la valeur de la masse effective d'un électron du nickel.
- Un autre point est essentiel à souligner. Le modèle précédent est construit pour **un seul mode classique du champ électromagnétique**. Nous n'avons considéré que la pulsation centrale de l'impulsion laser et il se peut que les écarts entre théorie et expérience puissent aussi provenir du fait d'avoir négligé les autres modes présents dans l'impulsion. Pour une impulsion de 48 fs, la largeur spectrale vaut  $\Delta\omega = 2 * 10^{13}$  Hz.

On retiendra que, malgré les insuffisances et une description sommaire de la matière, le modèle théorique utilisé permet de décrire une partie de la réalité expérimentale. Il peut être amélioré et complété. Il serait intéressant de tester la formule des indices optiques non-linéaires pour d'autres modélisations et notamment dans des situations résolues en temps.

## Chapitre 6

# Dynamique d'aimantation

Dans ce dernier chapitre on mène une réflexion sur la désaimantation cohérente induite par des impulsions laser femtosecondes dans des systèmes ferromagnétiques. Ce phénomène découvert récemment [8] permet une approche nouvelle de l'interaction rayonnement-matière dans les temps ultra-courts. En effet, il n'existe pas aujourd'hui, de consensus sur l'origine de la désaimantation ultra-rapide provoquée par des impulsions laser ultra-brèves. En section (6.1) on propose une définition de la désaimantation ultra-rapide cohérente et on expose les difficultés théoriques à décrire correctement le phénomène. On évoque les mécanismes physiques pouvant être à l'origine d'un tel effet, puis on se concentre sur l'aspect incontournable du couplage cohérent entre les spins et le champ électromagnétique externe. On utilise ensuite deux modèles différents traitant du magnétisme dans lesquels on incorpore les corrections relativistes. Une première approche, traitant de la dynamique d'aimantation sous la forme d'équations de Bloch est étudiée en section (6.2). Une seconde approche, exposée en section (6.3), propose de construire une fonction magnétique de Brillouin incluant une perturbation magnétique par le champ externe.

### 6.1 Désaimantation ultra-rapide cohérente

« Que vas-tu faire de ce que tu as appris ? »

Germain Barzotti

On rappelle brièvement les aspects physiques concernant la désaimantation cohérente et on explique que la description théorique d'un tel phénomène n'est pas évidente. Le magnétisme des phases condensées présente à la base, une grande complexité de description, et la mise hors-équilibre de tels systèmes en des temps ultra-brefs ne peut pas être décrit correctement par les théories existantes. On étudie ensuite l'hypothèse du couplage cohérent entre les spins et un champ électromagnétique dépendant du temps.

#### 6.1.1 Contexte et problématique

Comme nous l'avons expliqué dans la section (4.3.4), la deuxième expérience de [8] présente un signal magnéto-optique cohérent, c'est-à-dire **en phase avec l'impulsion laser excitatrice** de 48 fs. La variation de l'aimantation de l'échantillon semble "suivre" le champ électromagnétique du laser. Ces signaux cohérents sont différents de la désaimantation incohérente qui a été éliminée du signal mesuré, et apparaît à des temps plus longs, lorsque les entités physiques ont perdu toute mémoire relative à l'excitation initiale. La désaimantation incohérente peut se comprendre en imaginant que l'énergie déposée par le laser sur les charges et les spins "chauffe" le système. L'énergie d'agitation thermique augmente et s'oppose à l'ordre magnétique : le système désaimante. La désaimantation

cohérente, **sensible à la polarisation du champ électromagnétique**, est un processus d'ordre électromagnétique et non pas de désordre thermique. On rappelle, sur la figure 6.1, l'allure de tels signaux observés sur des échantillons ferromagnétiques de Ni et de CoPt<sub>3</sub>.

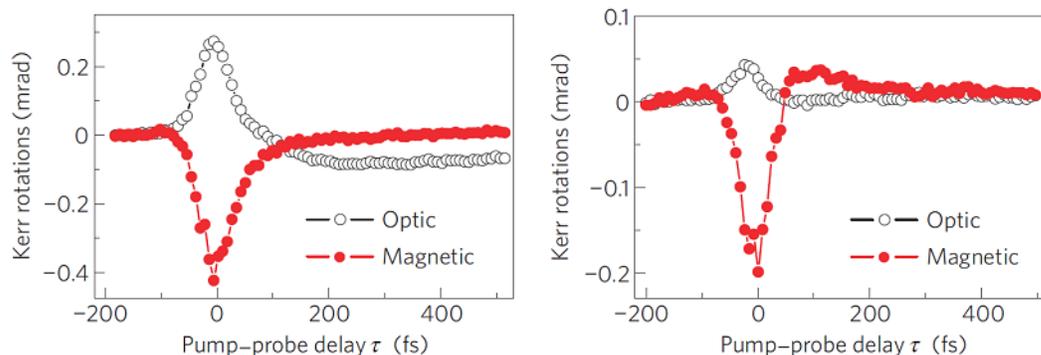


FIG. 6.1 – Signaux magnéto-optiques cohérents observés dans des échantillons de nickel et de CoPt<sub>3</sub> [8].

### Définition

A propos de la désaimantation cohérente, on pourrait dire que c'est un phénomène où le champ électromagnétique du laser génère, seul et/ou par action sur les entités physiques, **un ordre électromagnétique qui s'oppose à l'ordre magnétique interne initial du matériau**. Cependant, il paraît difficile de bâtir une théorie macroscopique, rendant compte d'une désaimantation partielle de l'ensemble de l'échantillon ferromagnétique. Ceci pour plusieurs raisons :

- Partant de la définition précédente, il faut au préalable définir les structures microscopiques impliquant l'ordre magnétique initial et le mécanisme prépondérant qui le génère.
- Ensuite il faut comprendre comment le champ électromagnétique externe dépendant du temps agit sur les entités microscopiques et/ou sur le mécanisme prépondérant, pour s'opposer à l'ordre magnétique "statique".
- Enfin, il faut prendre en compte l'ensemble des "sites magnétiques" et leurs interactions pour obtenir une "désaimantation" macroscopique.

On peut affirmer sans trop de doutes que ce sont les **moments magnétiques de spin** qui sont responsables majoritairement de l'aimantation d'un matériau et que l'amplitude élevée de l'ordre ferromagnétique provient de **l'interaction d'échange**. L'interaction spin-orbite doit aussi être prise en compte car c'est un mécanisme important dans les phénomènes magnéto-optiques. Au delà de cette compréhension microscopique, décrire le magnétisme macroscopique "statique" d'un système relève d'une grande complexité. On peut voir sur la figure 6.2, un état des lieux des différentes théories du magnétisme.

Un autre point est très important à souligner. L'aimantation macroscopique est relativement bien décrite à l'aide de la **physique statistique** qui calcule l'aimantation moyenne, en tenant compte de

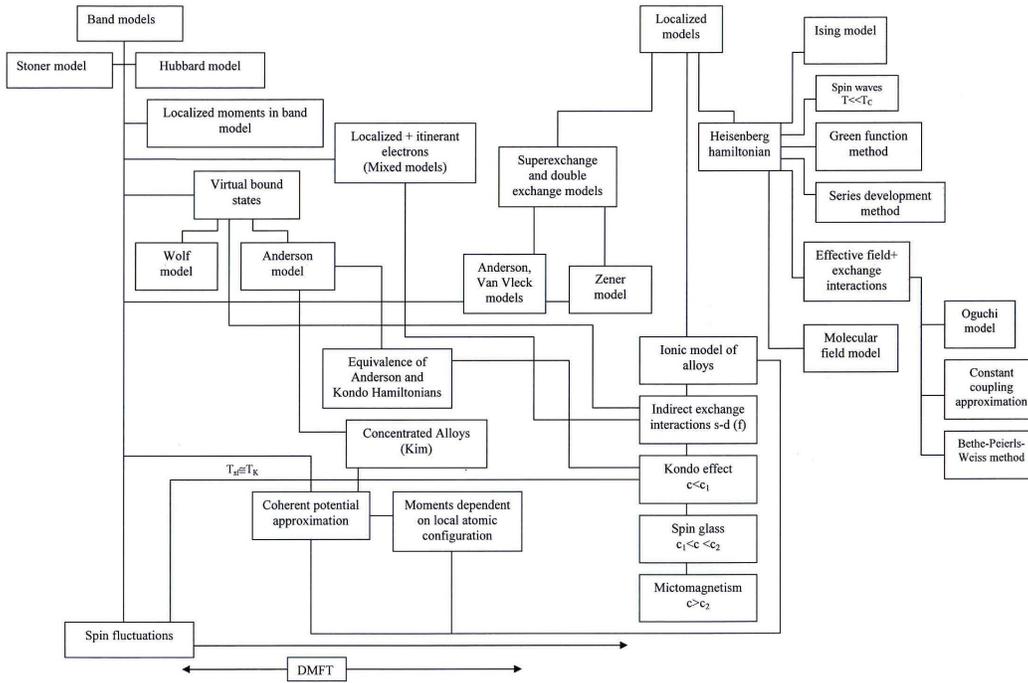


FIG. 6.2 – Théories et modèles décrivant le magnétisme [82].

la probabilité pour chaque "site magnétique" d'être dans un état défini d'énergie  $E$ . La probabilité est donnée par le **facteur de Boltzmann** :

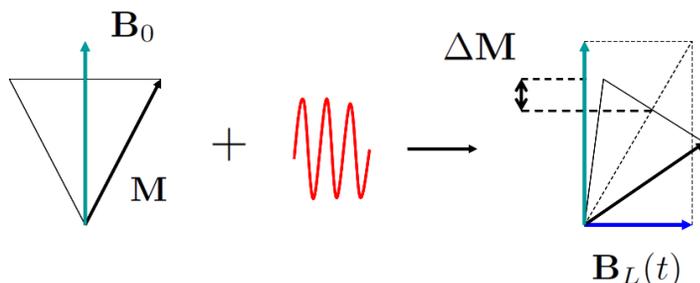
$$p(E) = \frac{e^{-\frac{E}{kT}}}{Z} = \frac{e^{\pm \frac{\mu_B \cdot \mathbf{B}}{kT}}}{Z}.$$

Cette probabilité est valide lorsque le système est à l'équilibre. Dans les régimes de désaimantation cohérente, le système est hors-équilibre et les charges et spins sont dans un **régime athermal**. La température n'étant pas définie, on ne peut pas utiliser la physique statistique pour décrire cette situation.

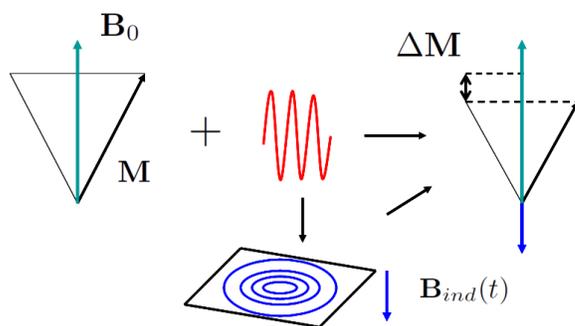
### 6.1.2 Origine(s)

Nous avons évoqué dans la section (4.3.1) qu'il n'y avait pas de consensus sur l'origine de la désaimantation ultra-rapide. Le débat est vif, et plusieurs explications sont proposées. La mesure d'un signal magnéto-optique cohérent apporte du crédit à l'hypothèse d'une désaimantation cohérente des films ferromagnétiques précédant la désaimantation incohérente. Comme nous l'avons défini dans le paragraphe précédent, ce phénomène doit se traduire par **la création d'un ordre électromagnétique induit** par le champ électromagnétique du laser qui s'oppose à l'ordre ferromagnétique "initial". Partant de cette idée générale, plusieurs possibilités peuvent être envisagées :

- Les champs électromagnétiques associés au laser  $\mathbf{B}_L(t)$  s'additionnent au champ magnétique statique  $\mathbf{B}_0$  et induisent une précession de l'aimantation dans une direction différente. Il y a **modification directionnelle de l'aimantation**.



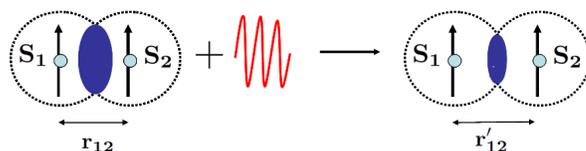
- La forte intensité du laser de pompe agit sur les charges et les spins et modifie leurs dynamiques. Il n'est pas à exclure que des courants de charges ou de spins induits par le champ électromagnétique dépendant du temps donnent naissance à un champ magnétique macroscopique interne, dépendant du temps  $\mathbf{B}_{ind}(t)$ . Dans ce cas la **modification directionnelle** de l'aimantation a lieu **après création** d'un champ magnétique par le mouvement des charges.



- Le mécanisme d'interaction prépondérant dans le ferromagnétisme provient de **l'interaction d'échange** entre les spins :

$$U = -J_{12}\mathbf{s}_1 \cdot \mathbf{s}_2 \quad J_{12} = \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \phi_1(\mathbf{r}_1)\phi_2(\mathbf{r}_1) \frac{e^2}{r_{12}} \phi_1(\mathbf{r}_2)\phi_2(\mathbf{r}_2).$$

L'amplitude du phénomène est lié à la **constante de couplage**  $J_{12}$  qui dépend des fonctions d'onde des charges. Dans des régimes d'excitations non-linéaires très élevées, il se peut que le champ électrique externe et de polarisation non-linéaire perturbant les charges modifient les fonctions d'onde. La fonction d'onde dépend alors du champ électrique incident ce qui se repercuté dans l'expression de la constante d'échange  $J_{12}$ . **Le recouvrement des fonctions d'onde** peut être modifié. On peut envisager une théorie ou un modèle visant à calculer une constante d'échange dépendant du champ externe  $J_{12}(E)$ .



Tous ces phénomènes peuvent d'ailleurs être envisagés simultanément. On concentre cependant nos efforts sur le couplage cohérent des spins avec les champs électromagnétiques du laser.

### 6.1.3 Couplage cohérent des spins avec le champ électromagnétique

Dans [8] les auteurs ont suggéré que l'effet Faraday non-linéaire devait être attribué à un couplage de type spin-orbite impliquant le champ électrique du laser dépendant du temps, et qu'il fallait considérer le hamiltonien (6.1) issu de la transformation de Foldy-Wouthuysen du hamiltonien relativiste de Dirac :

$$H^{FW} = mc^2 + eV + \frac{(\mathbf{p} - e\mathbf{A})^2}{2m} - \frac{e\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B} - \frac{e\hbar^2}{8m^2c^2} \boldsymbol{\nabla} \cdot \mathbf{E} - \frac{e\hbar}{4m^2c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A})) - \frac{ie\hbar}{8m^2c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\boldsymbol{\nabla} \wedge \mathbf{E}). \quad (6.1)$$

Ainsi le signal magnéto-optique cohérent peut être associé à la partie spinorielle de (6.1) impliquant le couplage entre les spins et les champs magnétique et électrique du laser et ceux dans la matière induits par ces derniers. Dans la section (1.5.1) nous avons montré que pour des impulsions lumineuses femto-secondes, le dernier terme de (6.1) pouvait être négligé. Le hamiltonien d'interaction spin-champ devient :

$$\sigma H^{FW} = -\frac{e\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot \left( \mathbf{B} - \frac{1}{2mc^2} \mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \right) = -\frac{e\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B}_{\text{eff}}, \quad (6.2)$$

où on notera parfois  $\mathbf{B}_{\text{eff}}$  le champ magnétique effectif associé au laser. Le hamiltonien (6.2) correspond à l'action perturbative du champ électromagnétique sur les spins du matériau. Un tel couplage se traduit dynamiquement par un mouvement de précession du spin autour du champ magnétique effectif et entraînerait une modification directionnelle de l'aimantation. Il nous faut évaluer l'importance de cette modification en tenant compte de l'ordre magnétique initial représenté par un champ magnétique  $\mathbf{B}_0$ .

#### Dynamique de spin induite par le champ

Concernant l'interaction du spin avec le champ électromagnétique du laser, nous avons montré en section (1.5.4) que le hamiltonien (6.2) permettait d'obtenir l'équation du mouvement suivante :

$$\frac{d\boldsymbol{\sigma}}{dt} = -\frac{e}{m} \boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{B}_{\text{eff}} = -\frac{e}{m} \boldsymbol{\sigma} \wedge \left( \mathbf{B} + \frac{1}{2mc^2} \mathbf{E} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \right). \quad (6.3)$$

Malgré une forme très simple, il est difficile de résoudre proprement l'équation (6.3), car elle contient l'impulsion  $\mathbf{p}$  dont la dynamique est gouvernée par l'équation (6.4) :

$$\begin{aligned} \frac{d\mathbf{P}}{dt} &= e \left( \mathbf{E} + \frac{\mathbf{P}}{m} \wedge \mathbf{B} \right) + \frac{1}{m} (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) \wedge \left[ \boldsymbol{\nabla} \wedge \left( \frac{e\hbar}{4mc^2} \boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E} \right) \right] + \frac{e\hbar}{2m} \boldsymbol{\sigma} \cdot \boldsymbol{\nabla} \mathbf{B} \\ &\quad - \frac{e\hbar^2}{8m^2c^2} \boldsymbol{\nabla} (\boldsymbol{\nabla} \cdot \mathbf{E}) + \frac{e\hbar}{4mc^2} \boldsymbol{\sigma} \wedge \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \vartheta (m^{-3}), \end{aligned} \quad (6.4)$$

où  $\mathbf{P}$  est l'impulsion généralisée dont on rappelle l'expression :

$$\mathbf{P} = \mathbf{p} - e\mathbf{A} - \frac{e\hbar}{4mc^2} \boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E}. \quad (6.5)$$

Nous sommes en réalité confronté à un **système d'équations couplées qui n'est pas simple à résoudre**. Pour avoir une idée du mouvement précessionnel du spin il faut choisir une expression pour l'impulsion  $\mathbf{p}$  qui soit réaliste et qui ne complique pas la résolution mathématique.

### Description du champ magnétique statique

La modification de la dynamique d'un spin par le champ externe nécessite de décrire le champ magnétique statique  $\mathbf{B}_0$  qui conditionne le mouvement du spin avant la perturbation. L'axe final de la précession est donné par la somme vectorielle de  $\mathbf{B}_0$  et de  $\mathbf{B}_{eff}$  :

$$\frac{d\boldsymbol{\sigma}}{dt} = -\frac{e}{2}\boldsymbol{\sigma} \wedge (\mathbf{B}_{eff} + \mathbf{B}_0).$$

Le champ magnétique  $\mathbf{B}_0$  correspond au champ effectif ressenti par le spin dans le matériau ferromagnétique. En choisissant de considérer le champ externe dépendant du temps au second ordre en  $1/m$ , il serait naturel d'appliquer le même traitement au champ statique et de le décomposer selon :

$$\mathbf{B}_0 = \mathbf{B}_{mat} + \frac{1}{2mc^2}\mathbf{E}_{mat} \wedge (\mathbf{p} - e\mathbf{A}_{mat}). \quad (6.6)$$

Avec la description (6.6) on peut séparer la contribution magnétique  $\mathbf{B}_{mat}$ , de la contribution due au couplage spin-orbite interne impliquant le champ cristallin du solide  $\mathbf{E}_{mat} = -\nabla V_{mat}$ . On remarquera la contribution de l'impulsion  $\mathbf{p}$  dont la présence complique les choses. Dans les matériaux ferromagnétiques, la partie magnétique peut être précisée microscopiquement en tenant compte de l'interaction d'échange avec les autres spins. Le hamiltonien d'interaction d'un spin avec l'ensemble des partenaires est alors.

$$H_i = -\frac{e\hbar}{2m}\boldsymbol{\sigma}_i \cdot \left( \mathbf{B}_0 + \mathbf{B}_{eff} + \sum_j J_{ij}\boldsymbol{\sigma}_j \right).$$

L'importance du phénomène provoqué par le champ externe revient à considérer la **compétition entre champ externe et champ interne**. L'énergie du couplage, induit par le laser, doit être comparée aux énergies mises en jeu avant la perturbation, c'est-à-dire l'interaction d'échange et le couplage spin-orbite avec le champ cristallin du réseau. Malgré cette évidence, la tâche n'est pas simple à réaliser. Dans la section (5.3.1) nous avons calculé que le champ électrique du laser  $\mathbf{E}_L$  était de l'ordre de  $10^8$  V/m. En faisant l'approximation d'une onde plane (simple mais non rigoureux) le champ magnétique associé  $\mathbf{B}_L = \mathbf{E}_L/c$  est de l'ordre de 1 T. A partir de l'expression (6.2) l'énergie  $U$  associée au couplage cohérent d'un spin avec le laser vaut :

$$U \approx \left| -\frac{e\hbar}{2m} \left( (1\text{T}) + \frac{1}{2mc^2} (10^8\text{V/m}) * (mc) \right) \right| \approx \left| -\frac{e\hbar}{2m} * (1\text{T}) \right| = 8.9 * 10^{-24}\text{J} = 5.6 * 10^{-5}\text{eV}.$$

Il faut comparer cette valeur à l'énergie microscopique d'échange et du couplage spin-orbite estimée au meV [73],[51]. L'énergie  $U$  semble trop faible, mais il faut tenir compte que cette estimation a été réalisée sur **un unique électron**. Dans la matière, il faut **tenir compte de la polarisation non linéaire des charges**, et le champ électrique du matériau peut être beaucoup plus élevé, si bien que la valeur de  $U$  tende vers le meV. **L'hypothèse d'un mécanisme de désaimantation impliquant les effets relativistes est donc parfaitement plausible.**

### Proposition(s) d'étude

Pour évaluer l'importance des corrections relativistes sur la dynamique d'aimantation, on propose de mener les deux études suivantes, présentées respectivement en sections (6.2) et (6.3) :

i) On considère l'aimantation  $\mathbf{M}$  associée à un **domaine magnétique ou à un macro-spin** en présence d'un champ magnétique  $\mathbf{H}(t)$  dépendant du temps. La dynamique d'aimantation induite par le champ est régie par l'équation suivante :

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = \gamma \mathbf{M} \wedge \mathbf{H}(t),$$

où  $\gamma$  est le facteur de Larmor et le champ  $\mathbf{H}(t)$  comprend un champ magnétique statique  $\mathbf{B}_0$  et le champ magnétique effectif impliquant les champs électromagnétiques du laser  $\mathbf{B}_L(t)$  et  $\mathbf{E}_L(t)$  :

$$\mathbf{H}(t) = \mathbf{B}_0 + \mathbf{B}_L(t) + \frac{1}{2mc^2} (\mathbf{E}_L(t) \wedge \mathbf{p}(t)).$$

On ajoute un terme d'amortissement phénoménologique impliquant les aimantations transverses ( $M_x$ ,  $M_y$ ), longitudinale  $M_z$  et les temps caractéristiques d'amortissement  $T_2$  et  $T_1$ . Le système évolue selon des équations de Bloch :

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = \gamma \mathbf{M} \wedge \mathbf{H}(t) - \frac{M_x \mathbf{e}_x}{T_2} - \frac{M_y \mathbf{e}_y}{T_2} - \frac{(M_z - M_0) \mathbf{e}_z}{T_1}. \quad (6.7)$$

Le but de l'étude est d'étudier l'**influence de la correction relativiste impliquant le couplage spin-orbite avec le champ du laser sur la dynamique d'aimantation.**

ii) On utilise l'expression de l'impulsion généralisée :

$$\mathbf{P} = \mathbf{p} - e\mathbf{A} - \frac{e\hbar}{4mc^2} \boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E},$$

qui contient une information provenant de l'interaction spin-orbite avec le champ électrique. Cette expression est mise à profit pour bâtir une théorie simple impliquant la **création d'un mouvement orbital induit par le champ externe.**

Remarque :

**Nourredine Ferkous (Université de Sétif, Algérie)** a réalisé un travail (non publié) qui permet de résoudre l'hamiltonien (6.2) dans le cadre de la mécanique quantique. En supposant que le champ électromagnétique se propage selon l'axe  $Oz$ , le hamiltonien  ${}^\sigma H^{FW}$  devient  $H_S$  et obéit à l'équation de Schrödinger :

$$H_S | \psi \rangle = \left[ \left( \frac{e\hbar E(t) p_x}{4m^2 c^2} - \frac{e\hbar}{2m} B(t) \right) \sigma_z - \frac{e\hbar E(t) p_z}{4m^2 c^2} \sigma_x \right] | \psi \rangle = i\hbar \frac{\partial}{\partial t} | \psi \rangle. \quad (6.8)$$

En supposant que la fonction d'onde s'écrit  $| \psi \rangle = e^{i(k_x x + k_z z)} | \chi(t) \rangle$ , on réinjecte cette expression dans l'équation (6.8) et on applique l'opérateur impulsion  $p_i = -i\hbar \nabla_i$  pour  $i = x, z$ . Tenant compte du fait que  $\mathbf{S} = \frac{\hbar}{2} \boldsymbol{\sigma}$  et en utilisant les opérateurs  $S_\pm$  définis comme  $S_\pm = S_x \pm iS_y$  on obtient l'équation d'évolution suivante pour  $| \chi(t) \rangle$  :

$$[\omega(t) S_z + G(t)(S_+ + S_-)] | \chi(t) \rangle = i\hbar \frac{\partial}{\partial t} | \chi(t) \rangle,$$

avec les quantités :

$$\begin{cases} \omega(t) = \left( \frac{e\hbar k_x}{2m^2 c^2} E(t) - \frac{e}{m} B(t) \right) \\ G(t) = -\frac{e\hbar k_z}{4m^2 c^2} E(t) \end{cases} .$$

Il s'agit ensuite de diagonaliser le hamiltonien obtenu. Pour cela on utilise une transformation unitaire de la fonction d'onde, présentée dans les références [79], [80] :

$$|\chi(t)\rangle = R |\chi'(t)\rangle = \exp\left(-\frac{\gamma}{2} (e^{-i\beta} S_+ - e^{i\beta} S_-)\right) |\chi'(t)\rangle,$$

où  $\gamma$  et  $\beta$  sont des paramètres à déterminer. Cette transformation de la fonction d'onde implique une transformation du hamiltonien  $H_S$  :

$$H_S |\chi(t)\rangle = i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\chi(t)\rangle \quad \Longrightarrow \quad \left( R^+ H_S R - i\hbar R^+ \frac{\partial R}{\partial t} \right) |\chi'(t)\rangle = i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\chi'(t)\rangle.$$

Après calcul on obtient une expression du hamiltonien transformé ne dépendant que de l'opérateur diagonal  $S_z$  à condition de poser les relations suivantes fixant les liens entre  $\gamma$ ,  $\beta$  et les quantités initiales  $\omega$  et  $G$  :

$$\begin{cases} \dot{\gamma} + 2G \sin \beta = 0 \\ (\dot{\beta} - \omega) \sin \gamma + 2G \cos \gamma \cos \beta = 0 \end{cases} . \quad (6.9)$$

En définissant  $\Delta(t) = \omega(t) + 2G(t) \cos \beta \sin \gamma + \dot{\beta}(1 - \cos \gamma)$  on peut calculer les valeurs propres du hamiltonien dans la base des états de spin up et down ( $|+\rangle, |-\rangle$ ); l'expression de la fonction d'onde du système devient :

$$\begin{aligned} |\chi(t)\rangle = & \frac{1}{\sqrt{2 \cosh(\gamma \cos \beta)}} \left( \exp\left(i \int \frac{\Delta(t')}{2} dt'\right) \exp\left(-\frac{\gamma}{2} e^{-i\beta}\right) |+\rangle \right. \\ & \left. + \exp\left(-i \int \frac{\Delta(t')}{2} dt'\right) \exp\left(\frac{\gamma}{2} e^{i\beta}\right) |-\rangle \right). \end{aligned} \quad (6.10)$$

Ce travail peut être mis à profit pour calculer les valeurs moyennes des composantes du spin au cours du temps  $S_i = \langle \chi(t) | S_i | \chi(t) \rangle$ , ou pour établir les probabilités de transition  $|\langle \chi(t) | \pm \rangle|$ .

## 6.2 Effets des corrections relativistes sur un macro-spin

« Un fourmilier ? Il faut pas croire ça. »

Choc culturel bénin

Ce travail s'inspire d'une étude réalisée dans l'ouvrage *Mécanique Quantique, Tome II* de Claude Cohen-Tanoudji [81]. Dans le complément BXIII, on trouve **une résolution des équations de Bloch** décrivant la dynamique d'un vecteur aimantation soumis à un champ magnétique statique et à un champ magnétique dépendant du temps. Ce travail se conclut par une étude dans l'espace de Fourier de la variation de l'aimantation selon l'axe  $Oz$  induite par le champ magnétique dépendant du temps. On **réalise** dans cette section une **étude** complètement **similaire** à celle effectuée dans [81] mais en **ajoutant la correction relativiste du second ordre** en  $1/m$ , qui permet d'obtenir des informations sur la variation d'aimantation induite par le couplage spin-orbite avec le champ électrique du laser.

### 6.2.1 Equations de Bloch

La projection de l'équation (6.7) sur les axes du repère cartésien  $Oxyz$  conduit aux équations de Bloch :

$$\frac{dM_x}{dt} = \gamma(M_y H_z(t) - M_z H_y(t)) - \frac{M_x}{T_2} \quad (6.11)$$

$$\frac{dM_y}{dt} = \gamma(M_z H_x(t) - M_x H_z(t)) - \frac{M_y}{T_2} \quad (6.12)$$

$$\frac{dM_z}{dt} = \gamma(M_x H_y(t) - M_y H_x(t)) - \frac{M_z - M_0}{T_1}, \quad (6.13)$$

avec dans cette section  $\gamma = -\frac{e}{m}$ . Pour résoudre ce système il est commode d'utiliser les variables  $M_{\pm}$  et  $H_{\pm}$  définies par :

$$\begin{cases} M_{\pm} = M_x \pm iM_y \\ H_{\pm} = H_x \pm iH_y \end{cases} .$$

On obtient l'équation d'évolution de  $M_{\pm}$  en effectuant  $((6.11) \pm i(6.12))$ . On peut également transformer l'équation (6.13) en remarquant que :

$$\begin{aligned} M_+ H_- - M_- H_+ &= (M_x + iM_y)(H_x - iH_y) - (M_x - iM_y)(H_x + iH_y) \\ &= -2M_x iH_y + 2iM_y H_x. \end{aligned}$$

Le système d'équations devient :

$$\frac{dM_{\pm}}{dt} = \mp i\gamma(M_{\pm} H_{\pm}(t) - M_z H_{\pm}(t)) - \frac{M_{\pm}}{T_2} \quad (6.14)$$

$$\frac{dM_z}{dt} = \frac{i\gamma}{2}(M_+ H_-(t) - M_- H_+(t)) - \frac{M_z - M_0}{T_1}. \quad (6.15)$$

Le champ  $\mathbf{H}(t)$  est composé de trois termes différents : le champ magnétique statique  $\mathbf{B}_0 = B_0 \mathbf{e}_z$  et le champ magnétique associé au laser  $\mathbf{H}_L(t) = (\mathbf{B}_L(t) + \frac{1}{2mc^2}(\mathbf{E}_L(t) \wedge \mathbf{p}(t)))$  où l'on considère la correction relativiste du second ordre en  $1/m$ .

On se place dans la configuration suivante : l'onde électromagnétique se propage dans la direction  $\mathbf{e}_z$  soit pour la description du champ laser  $\mathbf{B}_L(t) = B_L \cos(\omega t) \mathbf{e}_x$  et  $\mathbf{E}_L(t) = E_L \cos(\omega t) \mathbf{e}_y$  ; le mouvement de la charge associée à l'impulsion se situe dans le plan  $Oxy$  perpendiculaire à la direction de propagation ; le champ  $\mathbf{H}(t)$  a pour composantes :

$$\begin{aligned} \mathbf{H}_L(t) &= \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ B_0 \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} B_L \cos(\omega t) \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} + \frac{1}{2mc^2} \begin{bmatrix} 0 \\ E_L \cos(\omega t) \\ 0 \end{bmatrix} \wedge \begin{bmatrix} p_x(t) \\ p_y(t) \\ 0 \end{bmatrix} \\ &= \begin{bmatrix} B_L \cos(\omega t) \\ 0 \\ B_0 - \frac{1}{2mc^2} E_L \cos(\omega t) p_x(t) \end{bmatrix}. \end{aligned}$$

Ainsi :

$$\begin{cases} H_+ = H_- = B_L \cos(\omega t) \\ H_z = B_0 - \frac{1}{2mc^2} E_L \cos(\omega t) p_x(t) \end{cases} .$$

L'expression de  $p_x(t)$  est obtenue à partir de  $p_x(t) = m \frac{dx(t)}{dt}$  où  $x(t) = \frac{-eE_L \cos(\omega t)}{mD(\omega)}$  est donné par le **modèle de Drude**. Dans l'approximation d'une onde plane  $E_L = cB_L$ , on obtient :

$$\begin{aligned} p_x(t) &= m \frac{dx(t)}{dt} = m \frac{d}{dt} \left( \frac{-eE_L}{mD(\omega)} \cos(\omega t) \right) = \frac{e\omega E_L}{D(\omega)} \sin(\omega t) \\ H_z &= B_0 - \frac{e\omega E_L^2}{2mc^2 D(\omega)} \cos(\omega t) \sin(\omega t) = B_0 - \frac{e\omega B_L^2}{2mD(\omega)} \cos(\omega t) \sin(\omega t). \end{aligned}$$

Le système d'équation ((6.14)-(6.15)) devient :

$$\begin{aligned} \frac{dM_{\pm}}{dt} &= \mp i\gamma \left( M_{\pm} \left( B_0 - \frac{e\omega B_L^2}{2mD(\omega)} \cos(\omega t) \sin(\omega t) \right) - M_z B_L \cos(\omega t) \right) - \frac{M_{\pm}}{T_2} \\ \frac{dM_z}{dt} &= \frac{i\gamma}{2} (M_+ - M_-) B_L \cos(\omega t) - \frac{M_z - M_0}{T_1}. \end{aligned}$$

Enfin on note  $\omega_B = -\gamma B_0$  la pulsation cyclotron associée au champ statique et  $\omega_L = -\gamma B_L$  la pulsation cyclotron associée au champ laser :

$$\frac{dM_{\pm}}{dt} = \left( \pm i\omega_B \pm \frac{i\omega_L^2 \omega}{2\gamma m D(\omega)} \cos(\omega t) \sin(\omega t) \right) M_{\pm} \mp i\omega_L M_z \cos(\omega t) - \frac{M_{\pm}}{T_2} \quad (6.16)$$

$$\frac{dM_z}{dt} = -\frac{i}{2} \omega_L (M_+ - M_-) \cos(\omega t) - \frac{M_z - M_0}{T_1}. \quad (6.17)$$

## 6.2.2 Résolution

Comme les équations (6.16)-(6.17) ne peuvent être résolues exactement, on utilise la résolution proposée dans [81] où on cherche les solutions sous la forme d'un développement en puissance de  $\omega_L$  :

$$\begin{cases} M_z = M_z^{(0)} + \omega_L M_z^{(1)} + \omega_L^2 M_z^{(2)} + \dots \\ M_{\pm} = M_{\pm}^{(0)} + \omega_L M_{\pm}^{(1)} + \omega_L^2 M_{\pm}^{(2)} + \dots \end{cases}$$

On porte ce développement dans les équations précédentes et on regroupe les termes en puissance de  $\omega_L^n$  :

Pour  $n = 0$  : Il n'y a pas de perturbation.

$$\begin{cases} \frac{dM_{\pm}^{(0)}}{dt} = \pm i\omega_B M_{\pm}^{(0)} - \frac{M_{\pm}^{(0)}}{T_2} \\ \frac{dM_z^{(0)}}{dt} = -\frac{M_z^{(0)} - M_0}{T_1} \end{cases} \quad (6.18)$$

Pour  $n = 1$  : Il s'agit du premier ordre de perturbation qui fait apparaître la contribution du champ magnétique du laser.

$$\begin{cases} \frac{dM_{\pm}^{(1)}}{dt} = \pm i\omega_B M_{\pm}^{(1)} \mp iM_z^{(0)} \cos(\omega t) - \frac{M_{\pm}^{(1)}}{T_2} \\ \frac{dM_z^{(1)}}{dt} = -\frac{i}{2} (M_+^{(0)} - M_-^{(0)}) \cos(\omega t) - \frac{M_z^{(1)}}{T_1} \end{cases} \quad (6.19)$$

Pour  $n \geq 2$  apparait la perturbation liée à l'interaction spin-orbite.

$$\begin{cases} \frac{dM_{\pm}^{(n)}}{dt} = \pm i\omega_B M_{\pm}^{(n)} \pm \frac{i\omega}{2m\gamma D(\omega)} \cos(\omega t) \sin(\omega t) M_{\pm}^{(n-2)} \mp iM_z^{(n-1)} \cos(\omega t) - \frac{M_{\pm}^{(n)}}{T_2} \\ \frac{dM_z^{(n)}}{dt} = -\frac{i}{2} (M_+^{(n-1)} - M_-^{(n-1)}) \cos(\omega t) - \frac{M_z^{(n)}}{T_1} \end{cases} \quad (6.20)$$

Les termes  $M_{\pm}^{(n)}$  et  $M_z^{(n)}$  sont ensuite **développés en série de Fourier** :

$$M_{\pm}^{(n)} = \sum_{p=-\infty}^{\infty} M_{\pm(p)}^{(n)} e^{ip\omega t} \quad (6.21)$$

$$M_z^{(n)} = \sum_{p=-\infty}^{\infty} M_{z(p)}^{(n)} e^{ip\omega t}. \quad (6.22)$$

On injecte les développements (6.21) et (6.22) dans les systèmes d'équations (6.18), (6.19) et (6.20) et on écrit les équations d'évolutions sur la base  $e^{ip\omega t}$ . On obtient pour  $n = 0$

$$\begin{cases} M_{z(0)}^{(0)} = M_0 \\ M_{z(p)}^{(0)} = 0 \\ M_{\pm(p)}^{(0)} = 0 \end{cases} . \quad (6.23)$$

Pour  $n = 1$  : on précise qu'il faut développer le terme  $\cos(\omega t)$  en notation exponentielle complexe. La projection des deux termes suivants sur la base  $e^{ip\omega t}$  donne :

$$\begin{aligned} \cos(\omega t) M_z^{(0)} &= \frac{1}{2} (e^{i\omega t} + e^{-i\omega t}) \sum_{p=-\infty}^{\infty} M_{z(p)}^{(0)} e^{ip\omega t} \quad \mapsto \quad \frac{1}{2} (M_{z(p-1)}^{(0)} + M_{z(p+1)}^{(0)}) \\ \cos(\omega t) (M_+^{(0)} - M_-^{(0)}) &\quad \mapsto \quad \frac{1}{2} (M_{+(p-1)}^{(0)} + M_{+(p+1)}^{(0)} - M_{-(p-1)}^{(0)} - M_{-(p+1)}^{(0)}), \end{aligned}$$

qui permet d'obtenir les équations au premier ordre pour une composante  $p$  :

$$\begin{cases} \frac{dM_{\pm(p)}^{(1)}}{dt} = \pm i\omega_B M_{\pm(p)}^{(1)} \mp \frac{i}{2} (M_{z(p-1)}^{(0)} + M_{z(p+1)}^{(0)}) - \frac{M_{\pm(p)}^{(1)}}{T_2} \\ \frac{dM_{z(p)}^{(1)}}{dt} = -\frac{i}{4} (M_{+(p-1)}^{(0)} + M_{+(p+1)}^{(0)} - M_{-(p-1)}^{(0)} - M_{-(p+1)}^{(0)}) - \frac{M_{z(p)}^{(1)}}{T_1} \end{cases} . \quad (6.24)$$

Pour  $n \geq 2$ , c'est le terme  $\cos(\omega t) \sin(\omega t) M_{\pm}^{(n-2)}$  qu'il faut écrire en exponentielle complexe :

$$\begin{aligned} \cos(\omega t) \sin(\omega t) M_{\pm}^{(n-2)} &= \frac{1}{4i} (e^{2i\omega t} - e^{-2i\omega t}) \sum_{p=-\infty}^{\infty} M_{\pm(p)}^{(n-2)} e^{ip\omega t} \\ &\mapsto \frac{1}{4i} (M_{\pm(p-2)}^{(n-2)} - M_{\pm(p+2)}^{(n-2)}). \end{aligned}$$

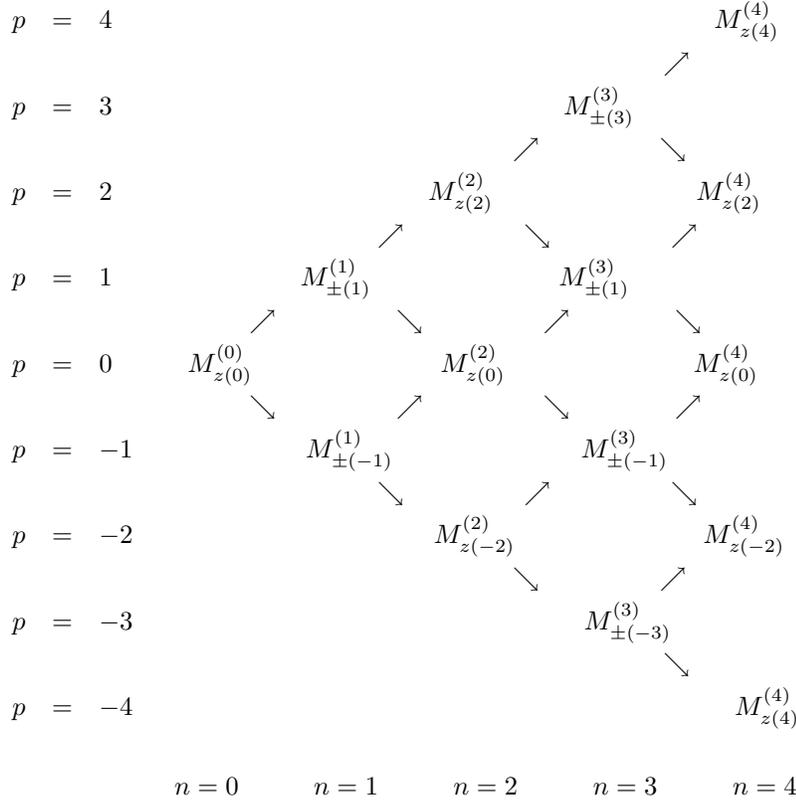
Les équations d'évolution s'écrivent :

$$\begin{cases} \frac{dM_{\pm(p)}^{(n)}}{dt} = \pm i\omega_B M_{\pm(p)}^{(n)} \pm \frac{e\omega}{8\gamma m D(\omega)} (M_{\pm(p-2)}^{(n-2)} + M_{\pm(p+2)}^{(n-2)}) \\ \quad \mp \frac{i}{2} (M_{z(p-1)}^{(n-1)} + M_{z(p+1)}^{(n-1)}) - \frac{M_{\pm(p)}^{(n)}}{T_2} \\ \frac{dM_{z(p)}^{(n)}}{dt} = -\frac{i}{4} (M_{+(p-1)}^{(n-1)} + M_{+(p+1)}^{(n-1)} - M_{-(p-1)}^{(n-1)} - M_{-(p+1)}^{(n-1)}) - \frac{M_{z(p)}^{(n)}}{T_1} \end{cases} . \quad (6.25)$$

### Structure des solutions

Les équations (6.23), (6.24) et (6.25) permettent de déterminer les solutions les unes après les autres.

L'équation (6.23) reconstitue l'état du système avant perturbation, il s'agit de l'aimantation initiale  $M_0$ , les composantes transverses  $M_{\pm(0)}^{(0)}$  sont évidemment nulles. Pour  $n = 1$  les conditions données par (6.18) et (6.23) imposent que la composante transverse  $M_{z(p)}^{(1)}$  soit nulle. En revanche, il apparaît une contribution longitudinale via les termes  $M_{\pm(p)}^{(1)}$ . Ainsi, utilisant (6.25) on voit que la solution se **structure sous forme d'un arbre**.



Les composantes transverses  $M_{z(p)}^{(n)}$  n'existent qu'aux ordres pairs et les composantes longitudinales  $M_{\pm(p)}^{(n)}$  qu'aux ordres impairs.

### 6.2.3 Calcul de l'aimantation

On cherche maintenant à évaluer l'influence du couplage spin-orbite sur l'aimantation transverse  $M_z$ . D'après (6.25) et la structure des solutions, l'impact de l'interaction spin-orbite intervient à partir de  $n = 3$  c'est-à-dire pour les composantes longitudinales  $M_{\pm}^{(3)}$ . La répercussion sur l'aimantation transverse ne se traduit qu'à partir du quatrième ordre et possède cinq modes de vibrations. On choisit cependant, pour simplifier, de ne calculer que la composantes  $M_{z(0)}^{(4)}$ . Il nous faut alors déterminer successivement  $M_{z(0)}^{(0)}$ ,  $M_{\pm(\pm 1)}^{(1)}$ ,  $M_{z(0)}^{(2)}$  et  $M_{z(\pm 2)}^{(2)}$  puis  $M_{\pm(\pm 1)}^{(3)}$ .

\* **i)** Pour  $n = 0$  l'aimantation est donnée par  $M = M_{z(0)}^{(0)} = M_0$ . La structure en arbre nous permet de calculer  $M_{\pm(\pm 1)}^{(1)}$  à l'aide la formule (6.24) que l'on réécrit :

$$\frac{dM_{\pm(p)}^{(1)}}{dt} = \pm i\omega_B M_{\pm(p)}^{(1)} \mp \frac{i}{2} \left( M_{z(p-1)}^{(0)} + M_{z(p+1)}^{(0)} \right) - \frac{M_{\pm(p)}^{(1)}}{T_2}. \quad (6.26)$$

On voit que le terme  $M_{z(p-1)}^{(0)}$  vaut  $M_0$  pour  $p = 1$ , et que  $M_{z(p+1)}^{(0)}$  vaut  $M_0$  pour  $p = -1$ . En travaillant dans l'espace de Fourier on déduit de (6.26) les quatre composantes longitudinales du premier ordre données par la structure en arbre :

$$\left\{ \begin{array}{l} M_{+(1)}^{(1)} = -\frac{M_0}{2(\omega - \omega_B - \frac{i}{T_2})} \\ M_{-(1)}^{(1)} = \frac{M_0}{2(\omega + \omega_B - \frac{i}{T_2})} \end{array} \right. \quad \left\{ \begin{array}{l} M_{+(-1)}^{(1)} = -\frac{M_0}{2(-\omega - \omega_B - \frac{i}{T_2})} \\ M_{-(-1)}^{(1)} = \frac{M_0}{2(-\omega + \omega_B - \frac{i}{T_2})} \end{array} \right. .$$

En notant :

$$\left\{ \begin{array}{l} m_- = \left( \omega - \omega_B - \frac{i}{T_2} \right) \\ m_-^* = \left( \omega - \omega_B + \frac{i}{T_2} \right) \end{array} \right. \quad \left\{ \begin{array}{l} m_+ = \left( \omega + \omega_B + \frac{i}{T_2} \right) \\ m_+^* = \left( \omega + \omega_B - \frac{i}{T_2} \right) \end{array} \right. ,$$

on peut réécrire le groupe précédent sous une forme plus simple :

$$\left\{ \begin{array}{l} M_{+(1)}^{(1)} = -\frac{M_0}{2m_-} \\ M_{-(1)}^{(1)} = \frac{M_0}{2m_+^*} \end{array} \right. \quad \left\{ \begin{array}{l} M_{+(-1)}^{(1)} = \frac{M_0}{2m_+} \\ M_{-(-1)}^{(1)} = -\frac{M_0}{2m_-^*} \end{array} \right. .$$

\* **ii)**. Ces résultats nous permettent de calculer les composantes de l'aimantation pour  $n = 2$ . Il existe trois composantes :  $M_{z(0)}^{(2)}$  pour le mode 0,  $M_{z(2)}^{(2)}$  pour le mode vibrant à  $2\omega$  et  $M_{z(-2)}^{(2)}$  pour le mode vibrant à  $-2\omega$ . La deuxième équation de (6.24) :

$$\frac{dM_{z(p)}^{(2)}}{dt} = -\frac{i}{4} \left( M_{+(p-1)}^{(1)} + M_{+(p+1)}^{(1)} - M_{-(p-1)}^{(1)} - M_{-(p+1)}^{(1)} \right) - \frac{M_{z(p)}^{(2)}}{T_1}, \quad (6.27)$$

avec les expressions de l'aimantation longitudinale du premier ordre permet de déterminer les 3 modes. Pour le mode 0 (6.27) donne :

$$\begin{aligned} M_{z(0)}^{(2)} &= -\frac{T_1 i}{4} \left( M_{+(-1)}^{(1)} + M_{+(1)}^{(1)} - M_{-(-1)}^{(1)} - M_{-(1)}^{(1)} \right) = -\frac{T_1 M_0 i}{4} \left( \frac{1}{2m_+} - \frac{1}{2m_-} + \frac{1}{2m_-^*} - \frac{1}{2m_+^*} \right) \\ &= -\frac{T_1 M_0 i}{8} \left( \frac{m_+^* - m_+}{|m_+|^2} + \frac{m_- - m_-^*}{|m_-|^2} \right) = -\frac{T_1 M_0 i}{8} \left( \frac{-\frac{2i}{T_2}}{|m_+|^2} + \frac{-\frac{2i}{T_2}}{|m_-|^2} \right) \\ &= -\frac{M_0 T_1}{4T_2} \left( \frac{1}{|m_+|^2} + \frac{1}{|m_-|^2} \right) \\ &= -\frac{M_0 T_1}{4T_2} \left( \frac{1}{(\omega + \omega_B)^2 + \frac{1}{T_2^2}} + \frac{1}{(\omega - \omega_B)^2 + \frac{1}{T_2^2}} \right). \end{aligned} \quad (6.28)$$

Le mode  $2\omega$  se calcule dans l'espace de Fourier en remarquant que  $M_{+(p+1)}^{(1)} = M_{+(3)}^{(1)}$  et  $M_{-(p+1)}^{(1)} = M_{-(3)}^{(1)}$  pour  $p = 2$  n'existent pas :

$$\begin{aligned} \left( 2i\omega + \frac{1}{T_1} \right) M_{z(2)}^{(2)} &= -\frac{i}{4} \left( M_{+(1)}^{(1)} + M_{+(3)}^{(1)} - M_{-(1)}^{(1)} - M_{-(3)}^{(1)} \right) \\ i \left( 2\omega - \frac{i}{T_1} \right) M_{z(2)}^{(2)} &= -\frac{i}{4} \left( M_{+(1)}^{(1)} - M_{-(1)}^{(1)} \right). \end{aligned}$$

En notant  $z_{(2\omega)} = \left( 2\omega - \frac{i}{T_1} \right)$ , on obtient alors :

$$M_{z(2)}^{(2)} = \frac{M_0}{8z_{(2\omega)}} \left( \frac{1}{m_-} + \frac{1}{m_+^*} \right) = \frac{M_0}{8(2\omega - \frac{i}{T_1})} \left( \frac{1}{(\omega - \omega_B - \frac{i}{T_2})} + \frac{1}{(\omega + \omega_B - \frac{i}{T_2})} \right).$$

Pour le mode  $2\omega$ , le travail est identique :

$$\begin{aligned} \left(-2i\omega + \frac{1}{T_1}\right) M_{z(-2)}^{(2)} &= -\frac{i}{4} \left( M_{+(1)}^{(-3)} + M_{+(-1)}^{(1)} - M_{-(-3)}^{(1)} - M_{-(-1)}^{(1)} \right) \\ i \left(-2\omega - \frac{i}{T_1}\right) M_{z(-2)}^{(2)} &= -\frac{i}{4} \left( M_{+(-1)}^{(1)} - M_{-(-1)}^{(1)} \right), \end{aligned}$$

mais en notant  $z_{(2\omega)}^* = \left(2\omega + \frac{i}{T_1}\right)$  :

$$M_{z(-2)}^{(2)} = \frac{M_0}{8z_{(2\omega)}^*} \left( \frac{1}{m_+} + \frac{1}{m_-^*} \right) = \frac{M_0}{8 \left(2\omega + \frac{i}{T_1}\right)} \left( \frac{1}{\left(\omega + \omega_B + \frac{i}{T_2}\right)} + \frac{1}{\left(\omega - \omega_B + \frac{i}{T_2}\right)} \right).$$

\* **iii**). Nous sommes maintenant en mesure de calculer les éléments d'aimantation longitudinaux du troisième ordre pour  $n = 3$ . On part de la première équation du groupe (6.25) :

$$\frac{dM_{\pm(p)}^{(n)}}{dt} = \pm i\omega_B M_{\pm(p)}^{(n)} \pm \frac{e\omega}{8\gamma m D(\omega)} \left( M_{\pm(p-2)}^{(n-2)} + M_{\pm(p+2)}^{(n-2)} \right) \mp \frac{i}{2} \left( M_{z(p-1)}^{(n-1)} + M_{z(p+1)}^{(n-1)} \right) - \frac{M_{\pm(p)}^{(n)}}{T_2},$$

que l'on réécrit dans le plan de Fourier :

$$\left( ip\omega + \frac{1}{T_2} \mp i\omega_B \right) M_{\pm(p)}^{(3)} = \pm \frac{e\omega}{8\gamma m D(\omega)} \left( M_{\pm(p-2)}^{(1)} + M_{\pm(p+2)}^{(1)} \right) \mp \frac{i}{2} \left( M_{z(p-1)}^{(2)} + M_{z(p+1)}^{(2)} \right). \quad (6.29)$$

Etant donné que l'on cherche à calculer la composante  $M_{z(0)}^{(4)}$  du quatrième ordre, on voit sur la structure en arbre qu'il suffit d'obtenir  $M_{\pm(1)}^{(3)}$  et  $M_{\pm(-1)}^{(3)}$ . Ainsi, pour le mode  $\omega$ , l'équation (6.29) devient en remarquant que  $M_{\pm(3)}^{(1)}$  n'existe pas :

$$\begin{aligned} \left( i\omega + \frac{1}{T_2} \mp i\omega_B \right) M_{\pm(1)}^{(3)} &= \pm \frac{e\omega}{8\gamma m D(\omega)} \left( M_{\pm(-1)}^{(1)} + M_{\pm(3)}^{(1)} \right) \mp \frac{i}{2} \left( M_{z(0)}^{(2)} + M_{z(2)}^{(2)} \right) \\ &= \pm \frac{e\omega}{8m D(\omega)} M_{\pm(-1)}^{(1)} \mp \frac{i}{2} \left( M_{z(0)}^{(2)} + M_{z(2)}^{(2)} \right). \end{aligned} \quad (6.30)$$

On calcule à part les aimantations  $M_{+(1)}^{(3)}$  et  $M_{-(1)}^{(3)}$ . Pour la première (6.30) s'écrit :

$$\begin{aligned} im_- M_{+(1)}^{(3)} &= \frac{e\omega}{8\gamma m D(\omega)} M_{+(-1)}^{(1)} - \frac{i}{2} \left( M_{z(0)}^{(2)} + M_{z(2)}^{(2)} \right) \\ &= \frac{e\omega}{8\gamma m D(\omega)} \frac{M_0}{2m_+} + \frac{i}{2} \frac{M_0 T_1}{4T_2} \left( \frac{1}{|m_+|^2} + \frac{1}{|m_-|^2} \right) - \frac{i}{2} \frac{M_0}{8z_{(2\omega)}} \left( \frac{1}{m_-} + \frac{1}{m_+^*} \right) \\ &= \frac{M_0}{8} \left( \frac{e\omega}{m\gamma D(\omega) 2m_+} + \frac{iT_1}{T_2} \left( \frac{1}{|m_+|^2} + \frac{1}{|m_-|^2} \right) - \frac{i}{2z_{(2\omega)}} \left( \frac{1}{m_-} + \frac{1}{m_+^*} \right) \right), \end{aligned}$$

et conduit à :

$$M_{+(1)}^{(3)} = \frac{M_0}{i8m_-} \left( \frac{e\omega}{m\gamma D(\omega) 2m_+} + \frac{iT_1}{T_2} \left( \frac{1}{|m_+|^2} + \frac{1}{|m_-|^2} \right) - \frac{i}{2z_{(2\omega)}} \left( \frac{1}{m_-} + \frac{1}{m_+^*} \right) \right). \quad (6.31)$$

Pour l'aimantation  $M_{-(1)}^{(3)}$  le travail est identique. On obtient :

$$M_{-(1)}^{(3)} = \frac{M_0}{i8m_+^*} \left( \frac{e\omega}{m\gamma D(\omega) 2m_-^*} - \frac{iT_1}{T_2} \left( \frac{1}{|m_+|^2} + \frac{1}{|m_-|^2} \right) + \frac{i}{2z_{(2\omega)}} \left( \frac{1}{m_-} + \frac{1}{m_+^*} \right) \right). \quad (6.32)$$

On réalise la même opération pour le mode  $-\omega$ , l'équation (6.29) s'écrit en remarquant que  $M_{\pm(-3)}^{(1)}$  n'existe pas :

$$\begin{aligned} \left(-i\omega + \frac{1}{T_2} \mp i\omega_B\right) M_{\pm(-1)}^{(3)} &= \pm \frac{e\omega}{8\gamma m D(\omega)} \left(M_{\pm(-3)}^{(1)} + M_{\pm(1)}^{(1)}\right) \mp \frac{i}{2} \left(M_{z(-2)}^{(2)} + M_{z(0)}^{(2)}\right) \\ &= \pm \frac{e\omega}{8\gamma m D(\omega)} M_{\pm(1)}^{(1)} \mp \frac{i}{2} \left(M_{z(-2)}^{(2)} + M_{z(0)}^{(2)}\right), \end{aligned}$$

et les aimantations  $M_{+(-1)}^{(3)}$  et  $M_{-(-1)}^{(3)}$  prennent la forme :

$$M_{+(-1)}^{(3)} = \frac{M_0}{-im_+8} \left( -\frac{e\omega}{\gamma m D(\omega) 2m_-} + \frac{iT_1}{T_2} \left( \frac{1}{|m_+|^2} + \frac{1}{|m_-|^2} \right) - \frac{i}{2z_{(2\omega)}^*} \left( \frac{1}{m_+} + \frac{1}{m_-^*} \right) \right) \quad (6.33)$$

$$M_{-(-1)}^{(3)} = \frac{M_0}{-im_-^*8} \left( -\frac{e\omega}{\gamma m D(\omega) 2m_+^*} - \frac{iT_1}{T_2} \left( \frac{1}{|m_+|^2} + \frac{1}{|m_-|^2} \right) + \frac{i}{2z_{(2\omega)}^*} \left( \frac{1}{m_+} + \frac{1}{m_-^*} \right) \right). \quad (6.34)$$

\* **iv**). Les quatre expressions permettent de calculer la composante d'aimantation transverse  $M_{z(0)}^{(4)}$  à l'ordre  $n = 4$ . Elle s'obtient avec la deuxième équation du groupe (6.25) :

$$\frac{dM_{z(p)}^{(4)}}{dt} = -\frac{i}{4} \left( M_{+(p-1)}^{(3)} + M_{+(p+1)}^{(3)} - M_{-(p-1)}^{(3)} - M_{-(p+1)}^{(3)} \right) - \frac{M_{z(p)}^{(4)}}{T_1},$$

qui donne pour le mode  $p = 0$  :

$$+\frac{1}{T_1} M_{z(0)}^{(4)} = -\frac{i}{4} \left( M_{+(-1)}^{(3)} + M_{+(1)}^{(3)} - M_{-(-1)}^{(3)} - M_{-(+1)}^{(3)} \right).$$

Avec les expressions (6.31), (6.32), (6.33) et (6.34) on obtient :

$$\begin{aligned} M_{z(0)}^{(4)} &= \left( -\frac{iT_1}{4} \right) \frac{M_0}{i8} \left[ \frac{e\omega}{\gamma m D(\omega) 2} \left( \frac{1}{m_- m_+} + \frac{1}{m_+ m_-} - \frac{1}{m_+^* m_-^*} - \frac{1}{m_-^* m_+^*} \right) \right. \\ &\quad + \frac{iT_1}{T_2} \left( \frac{1}{|m_+|^2} + \frac{1}{|m_-|^2} \right) \left( -\frac{1}{m_+} + \frac{1}{m_-} - \frac{1}{m_-^*} + \frac{1}{m_+^*} \right) \\ &\quad \left. + \frac{i}{2z_{(2\omega)}} \left( \frac{1}{m_-} + \frac{1}{m_+^*} \right) \left( -\frac{1}{m_-} - \frac{1}{m_+^*} \right) + \frac{i}{2z_{(2\omega)}^*} \left( \frac{1}{m_+} + \frac{1}{m_-^*} \right) \left( \frac{1}{m_+} - \frac{1}{m_-^*} \right) \right] \\ &= \left( -\frac{M_0 T_1}{32} \right) \left[ \frac{e\omega}{\gamma m D(\omega) 2} \left( \frac{2}{m_- m_+} - \frac{2}{m_+^* m_-^*} \right) \right. \\ &\quad + \frac{iT_1}{T_2} \left( \frac{1}{|m_+|^2} + \frac{1}{|m_-|^2} \right) \left( \frac{m_-^* - m_-}{|m_-|^2} + \frac{m_+ - m_+^*}{|m_+|^2} \right) \\ &\quad \left. - \frac{i}{2z_{(2\omega)}} \left( \frac{1}{m_-} + \frac{1}{m_+^*} \right)^2 + \frac{i}{2z_{(2\omega)}^*} \left( \frac{1}{m_+} + \frac{1}{m_-^*} \right)^2 \right]. \quad (6.35) \end{aligned}$$

Pour simplifier cette expression, on peut d'abord remarquer que dans la seconde ligne de (6.35)  $m_+ - m_+^* = m_-^* - m_- = 2i/T_2$ . On utilise ensuite la propriété des nombres complexes  $z + z^* = 2\text{Re}(z)$  et  $z - z^* = 2i\text{Im}(z)$ . En effet, dans la première ligne de (6.35)  $1/(m_+^* m_-^*)$  est bien le complexe conjugué de  $1/(m_- m_+)$ . Dans la dernière ligne de (6.35) la quantité  $i/(2z_{(2\omega)}^*)(1/m_+ + 1/m_-^*)^2$  est le complexe conjugué de  $-i/(2z_{(2\omega)})(1/m_+^* + 1/m_-)^2$ .

On obtient les trois termes suivants :

$$M_{z(0)}^{(4)} = +M_0 \underbrace{\left(\frac{T_1}{4T_2}\right)^2 \left(\frac{1}{|m_+|^2} + \frac{1}{|m_-|^2}\right)^2}_A - \underbrace{\frac{M_0 T_1 e \omega}{16 \gamma m D(\omega)} i \operatorname{Im} \left[ \frac{1}{m_- m_+} \right]}_B + \underbrace{\frac{M_0 T_1}{16} \operatorname{Re} \left[ \frac{i}{2z_{(2\omega)}} \left( \frac{1}{m_-} + \frac{1}{m_+^*} \right)^2 \right]}_C.$$

- La quantité  $A$  est la contribution au quatrième ordre due au champ magnétique du laser  $B_L$ . On peut remarquer qu'elle vaut précisément le carré de la perturbation  $M_{z(0)}^{(2)}$  du deuxième ordre obtenue en (6.28).
- Le terme  $B$  est la perturbation induite sur  $M_z$  par l'interaction spin-orbite. C'est une quantité complexe due à la présence du facteur  $i$  et de la fonction de réponse  $D(\omega)$ .
- Enfin le terme  $C$  est la répercussion des éléments d'aimantation du second ordre  $M_{z(2)}^{(2)}$  et  $M_{z(-2)}^{(2)}$  vibrant respectivement à  $2\omega$  et  $-2\omega$ .

On précise les expressions précédentes :

$$\begin{aligned} \operatorname{Im} \left[ \frac{1}{m_- m_+} \right] &= \operatorname{Im} \left[ \frac{1}{(\omega - \omega_B - \frac{i}{T_2})(\omega + \omega_B + \frac{i}{T_2})} \right] = \frac{2\omega_B}{T_2 \left( (\omega^2 - \omega_B^2 + \frac{1}{T_2^2})^2 + \frac{4\omega_B^2}{T_2^2} \right)} \\ \operatorname{Re} \left[ \frac{i}{2z_{(2\omega)}} \left( \frac{1}{m_-} + \frac{1}{m_+^*} \right)^2 \right] &= \operatorname{Re} \left[ \frac{i}{2\omega - \frac{i}{T_1}} \left( \frac{1}{(\omega - \omega_B - \frac{i}{T_2})} + \frac{1}{(\omega + \omega_B - \frac{i}{T_2})} \right)^2 \right] \\ &= \frac{(4\omega/T_2)X + (4\omega^2 - 1/T_2^2)Y}{X^2 + Y^2}, \end{aligned}$$

avec :

$$\begin{aligned} X &= (2\omega \left( (\omega^2 - \omega_B^2 - 1/T_2^2)^2 - 4\omega^2/T_2^2 \right) + (4\omega/T_1 T_2)(\omega^2 - \omega_B^2 - 1/T_2^2)) \\ Y &= (-1/T_1 \left( (\omega^2 - \omega_B^2 - 1/T_2^2)^2 - 4\omega^2/T_2^2 \right) - (8\omega^2/T_2)(\omega^2 - \omega_B^2 - 1/T_2^2)). \end{aligned}$$

L'aimantation transverse au quatrième ordre pour le mode  $p = 0$  s'écrit :

$$\begin{aligned} M_{z(0)}^{(4)} &= M_0 \left( -\frac{i e \omega}{16 \gamma m D(\omega)} \frac{2\omega_B T_1}{T_2 \left( (\omega^2 - \omega_B^2 + \frac{1}{T_2^2})^2 + \frac{4\omega_B^2}{T_2^2} \right)} + \frac{T_1 (4\omega/T_2)X + (4\omega^2 - 1/T_2^2)Y}{16 X^2 + Y^2} \right. \\ &\quad \left. + \left( \frac{T_1}{4T_2} \right)^2 \left( \frac{1}{((\omega + \omega_B)^2 + \frac{1}{T_2^2})} + \frac{1}{((\omega - \omega_B)^2 + \frac{1}{T_2^2})} \right)^2 \right). \end{aligned} \quad (6.36)$$

## 6.2.4 Résultats

On rappelle que l'aimantation  $M_z$  est développée en puissance de  $\omega_L = -\gamma B_L$ . Les composantes transverses n'existent qu'aux ordres pairs et l'expression exacte de l'aimantation  $M_z$  au quatrième ordre s'écrit selon (6.37). Pour simplifier, on ne considère que les termes du mode  $p = 0$  et l'expression se réduit à (6.38).

$$\begin{aligned} M_z &= M_z^{(0)} + \omega_L^2 M_z^{(2)} + \omega_L^4 M_z^{(4)} \\ &= M_z^{(0)} + \omega_L^2 \left( \sum_{p=-2}^2 M_{z(p)}^{(2)} e^{ip\omega t} \right) + \omega_L^4 \left( \sum_{p=-4}^4 M_{z(p)}^{(4)} e^{ip\omega t} \right) \end{aligned} \quad (6.37)$$

$$\approx M_{z(0)} + \omega_L^2 M_{z(0)}^{(2)} + \omega_L^4 M_{z(0)}^{(4)}. \quad (6.38)$$

La composante de l'aimantation transverse prend la forme finale :

$$M_z = M_0 \left( 1 - \omega_L^2 \left( \frac{T_1}{4T_2} \right) \left( \frac{1}{|m_+|^2} + \frac{1}{|m_-|^2} \right) + \omega_L^4 \left( \frac{T_1}{4T_2} \right)^2 \left( \frac{1}{|m_+|^2} + \frac{1}{|m_-|^2} \right)^2 - \frac{\omega_L^4 T_1}{16} \left( \frac{i\omega}{\gamma m D(\omega)} \text{Im} \left[ \frac{1}{m_- m_+} \right] - \text{Re} \left[ \frac{i}{2z(2\omega)} \left( \frac{1}{m_-} + \frac{1}{m_+^*} \right)^2 \right] \right) \right). \quad (6.39)$$

### Paramétrage

Pour avoir une idée de l'influence de ces corrections, il faut tout d'abord **comparer les résultats du quatrième ordre par rapport aux travaux réalisés au deuxième ordre** dans [81]. Dans cet ouvrage, la formule du deuxième ordre suivante est étudiée :

$$\frac{M_z}{M_0} = 1 - \omega_L^2 \left( \frac{T_1}{4T_2} \right) \left( \frac{1}{|m_+|^2} + \frac{1}{|m_-|^2} \right). \quad (6.40)$$

Il y est présenté une courbe autour de la résonance  $\omega = \omega_B$  dans le cas théorique idéal où  $T_1 = T_2$  et  $\omega_L T_1 = 1$ . Dans la zone de résonance la formule (6.40) se simplifie selon :

$$\frac{M_z}{M_0} = 1 - \omega_L^2 \left( \frac{T_1}{4T_2 |m_-|^2} \right) = 1 - \frac{\omega_L^2 T_1 T_2}{4} = 1 - \frac{\omega_L^2 T_1^2}{4} = 1 - \frac{1}{4} = 0.75.$$

On observe bien une diminution de l'aimantation de 25 pourcents comme on peut le voir sur la figure 6.3.

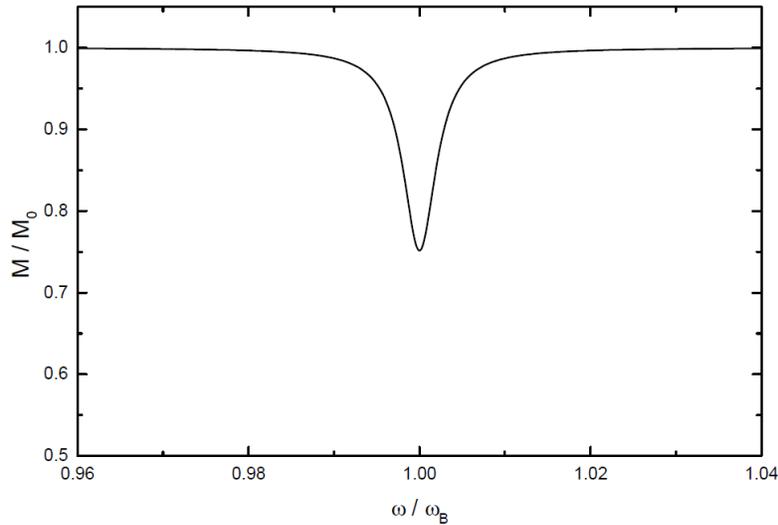


FIG. 6.3 – Aimantation normalisée en fonction de la fréquence normalisée au deuxième ordre pour  $T_1 = T_2$  et  $\omega_L T_1 = 1$  [81].

Dans le cas qui nous concerne, il faut **adapter les paramètres physiques à la réalité des expériences que nous étudions**. Il faut fixer les paramètres  $\omega_B$ ,  $\omega_L$ ,  $T_1$  et  $T_2$ . Le paramètre  $\omega_B = -\frac{e}{m} B_0$  est la pulsation cyclotron associée à la valeur du champ magnétique statique, c'est-à-dire le champ magnétique de la matière. On a vu dans les sections précédentes, qu'il est de l'ordre de 1000

T pour les ferromagnétiques. On choisit de prendre  $B_0 = 1044$  T associée à la valeur  $m_{eff} = 0.3m_e$ . Ainsi la valeur de  $\omega_B$  vaut  $\omega_B = 6.14 \cdot 10^{14} \text{ s}^{-1}$ . Ce paramètre n'est pas le plus important car il indique essentiellement la pulsation de résonance du système. On voit cependant la nécessité de considérer des champs magnétiques internes élevés pour observer une résonance dans le domaine du visible. La valeur de  $\omega_L$  concernant la pulsation cyclotron associée à l'amplitude du champ magnétique du laser s'écrit selon :

$$\omega_L = -\frac{e}{m_{eff}} B_L = -\frac{e}{m_{eff} c} E_L.$$

On choisit de prendre pour l'amplitude du champ électrique du laser  $E_L$ , la valeur correspondant à l'énergie absorbée maximale dans les expériences de [8] valant  $E_L = 7.3 \cdot 10^8 \text{ V/m}$ , qui fournit une valeur de  $\omega_L = 1.4 \cdot 10^{12} \text{ s}^{-1}$ . Le temps de relaxation transverse  $T_1$  associé est estimé à 3 ps et le temps  $T_2$  décrivant le phénomène de décohérence à  $T_2 = T_1/10 = 0.3 \text{ ps}$  [77]. Ainsi pour ces valeurs la diminution relative d'aimantation est estimée à 0.53, comme on peut le voir sur la figure 6.4.

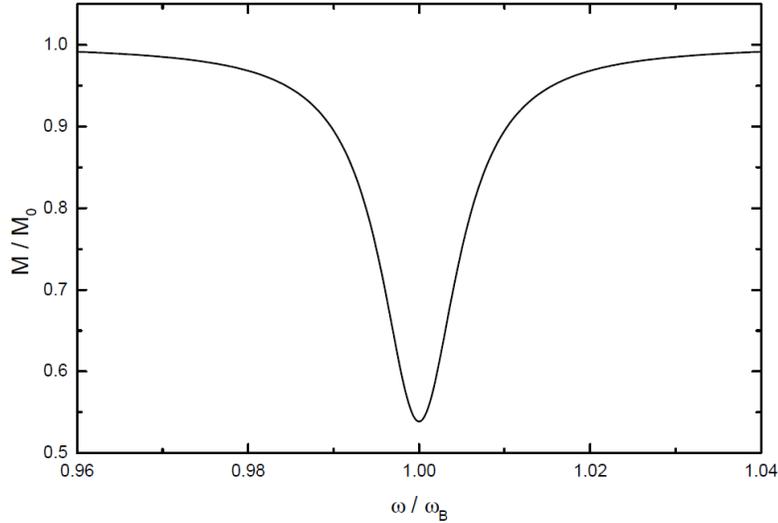


FIG. 6.4 – Aimantation normalisée en fonction de la fréquence normalisée au deuxième ordre pour  $T_2 = T_1/10 = 0.3 \text{ ps}$  et  $\omega_L = 1.4 \cdot 10^{12} \text{ s}^{-1}$ .

### Influence des termes du quatrième ordre

On regarde à présent, l'importance des corrections du quatrième ordre par rapport à celles du deuxième ordre. La formule (6.39) est présentée de la façon suivante :

$$\frac{M_z}{M_0} = 1 - \omega_L^2 \left( \frac{T_1}{4T_2} \right) \left( \frac{1}{|m_+|^2} + \frac{1}{|m_-|^2} \right) + A + B + C.$$

On étudie séparément l'importance des termes  $A$ ,  $B$  et  $C$  :

$$\begin{aligned} A &= +\omega_L^4 \left( \frac{T_1}{4T_2} \right)^2 \left( \frac{1}{|m_+|^2} + \frac{1}{|m_-|^2} \right)^2, \\ B &= -\frac{\omega_L^4 T_1}{16} \frac{i e \omega}{\gamma m D(\omega)} \text{Im} \left[ \frac{1}{m_- m_+} \right], \\ C &= \frac{\omega_L^4 T_1}{16} \text{Re} \left[ \frac{i}{2z_{(2\omega)}} \left( \frac{1}{m_-} + \frac{1}{m_+^*} \right)^2 \right]. \end{aligned}$$

La modification apportée par le premier terme  $A$  conduit à :

$$\frac{M_z}{M_0} = 1 - \omega_L^2 \left( \frac{T_1}{4T_2} \right) \left( \frac{1}{|m_+|^2} + \frac{1}{|m_-|^2} \right) + \omega_L^4 \left( \frac{T_1}{4T_2} \right)^2 \left( \frac{1}{|m_+|^2} + \frac{1}{|m_-|^2} \right)^2.$$

La diminution d'aimantation relative totale est moins importante comme on peut voir sur la figure 6.5.

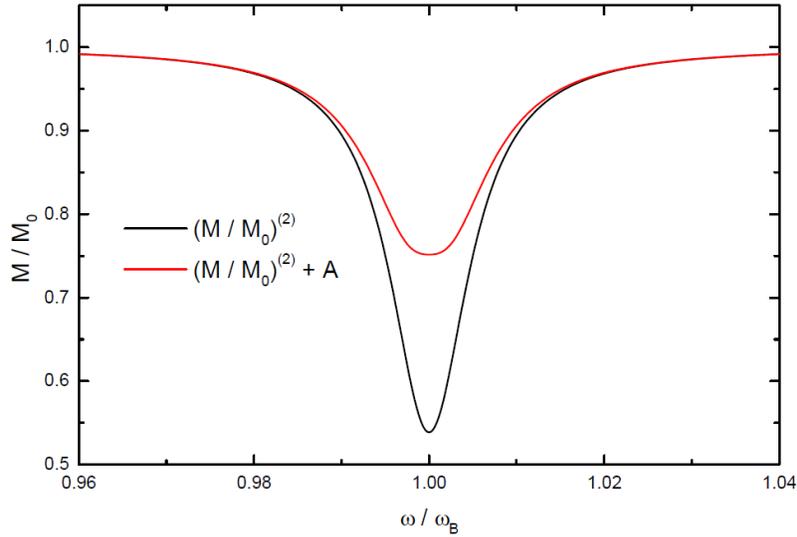


FIG. 6.5 – Aimantations normalisées en fonction de la fréquence normalisée au deuxième et quatrième ordre (influence du terme  $A$ ) pour  $T_2 = T_1/10 = 0.3$  ps et  $\omega_L = 1.4 * 10^{12} \text{s}^{-1}$ .

Les influences des termes  $B$  et  $C$  sont en réalité très faibles comme nous le montre un calcul d'ordre de grandeur. Par exemple, on aura pour le terme  $B$  avec  $T_1 = T_2 = 1/\omega_L$  et les expressions données en (6.39) :

$$\begin{aligned} B &= -\frac{\omega_L^4 T_1}{16} \frac{i\omega}{\gamma m D(\omega)} \text{Im} \left[ \frac{1}{m_- m_+} \right] \\ &\approx -\frac{\omega_L^4 T_1}{16} \frac{\omega}{D(\omega)} \frac{T_2}{\omega_B}. \end{aligned} \quad (6.41)$$

Il faut préciser la valeur de la pulsation  $\omega$  associée au laser. Dans les expériences de [8], nous l'avions déterminée à  $\omega = 2.36 * 10^{15} \text{s}^{-1}$  dans le chapitre 5. Mais comme on réalise l'étude à la résonance, on la fixe égale à  $\omega_0 = 6.18 * 10^{14} \text{s}^{-1}$  qui est plus faible. La fonction de réponse  $D(\omega)$  est approximée à  $\omega^2$  soit  $\omega_B^2$ . Le rapport (6.41) est ainsi évalué à :

$$B \approx (6.41) \approx -\frac{\omega_L^4 T_1}{16} \frac{\omega_0}{\omega_0^2} \frac{T_2}{\omega_B} \approx -\frac{\omega_L^4 T_1^2}{16 \omega_0^2} \approx -\frac{\omega_L^2}{16 \omega_0^2} \approx -2.5 * 10^{-8}. \quad (6.42)$$

La contribution du terme  $B$  est donc bien négligeable. Il en va de même pour le terme  $C$  qui est du même ordre de grandeur :

$$\begin{aligned} C &= \frac{\omega_L^4 T_1}{16} \operatorname{Re} \left[ \frac{i}{2z_{(2\omega)}} \left( \frac{1}{m_-} + \frac{1}{m_+^*} \right)^2 \right] \\ &\approx \frac{\omega_L^4 T_1}{16} \frac{T_2}{\omega_0^2} \approx \frac{\omega_L^2}{16\omega_0^2} \approx 2.5 * 10^{-8}. \end{aligned} \quad (6.43)$$

Remarques :

- Il est important de préciser qu'il est très difficile d'avoir une idée précise de l'amplitude de ce phénomène car nous n'avons pas de données précises sur les temps  $T_1$  et  $T_2$ . La figure 6.6 montre la variation de la désaimantation pour différents rapports de  $T_1/T_2$  pour une valeur de  $T_1\omega_L = 1$ .

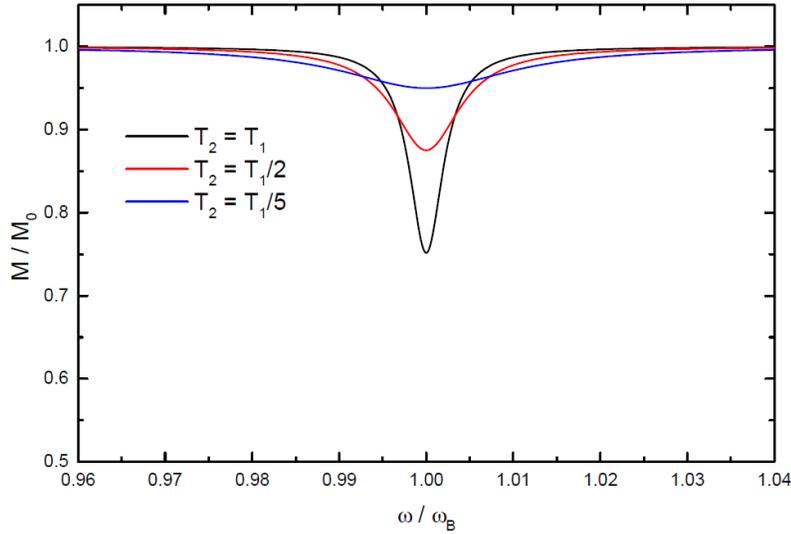


FIG. 6.6 – Aimantation normalisée en fonction de la fréquence normalisée au deuxième ordre pour  $\omega_L T_1 = 1$  et différents rapports  $T_2/T_1$ .

- Nous aurions souhaité réaliser des simulations pour des valeurs de champ électrique plus élevées mais ceci n'est pas possible avec ce modèle. En effet, en supposant qu'on puisse augmenter l'amplitude  $E_L$  et donc le paramètre  $\omega_L$ , en gardant une valeur pour  $T_1$  estimée à la picoseconde, la diminution relative de l'aimantation donnée par exemple par la formule (6.39) donne des résultats déraisonnables. Par exemple en prenant  $E_L \approx 10^{10}$  V/m et  $T_1 \approx 1$  ps, on obtient :

$$\frac{M_z}{M_0} = 1 - \frac{\omega_L^2 T_1^2}{4} = -1520.$$

Ce résultat est complètement absurde et montre clairement les limites de ce modèle. En effet, les temps de relaxation sont reliés entre autre chose aux collisions entre particules du matériau, et sont fonctions de l'énergie absorbée par l'échantillon qui est déposée par le laser. On a donc phénoménologiquement,  $T_1 = T_1(E)$  et  $T_2 = T_2(E)$ . On ne peut donc pas étudier raisonnablement la diminution d'aimantation pour des amplitudes de champ plus élevées sans connaître la

corrélation avec les temps d'amortissement.

## Conclusion

On peut faire les commentaires suivants :

- La correction relativiste impliquant l'interaction spin-orbite est susceptible de modifier l'aimantation transverse  $M_0$  à partir du quatrième ordre. Elle est cependant d'amplitude négligeable.
- Il faut cependant préciser que ce développement ne contient pas la physique de l'optique non-linéaire. Il faudrait pouvoir incorporer les effets non-linéaires de polarisation et les ajouter au champ électromagnétique externe.
- L'information principale apportée par la connaissance des termes du quatrième ordre porte sur la contribution du champ magnétique du laser dépendant du temps. Elle se traduit par une diminution de la désaimantation transverse par rapport aux résultats du second ordre.
- Le modèle présente des limites de description importantes pour des amplitudes de champ électromagnétique élevées. Il se pose le problème de la dépendance des temps d'amortissements avec l'excitation externe. Cette résolution des équations de Bloch n'est pas adaptée pour décrire la désaimantation cohérente.

## 6.3 Effets de l'impulsion généralisée

« Zwei mal gewichst esch wie gefickt. »

Ein schlauer Fuchs.

On propose un modèle très simple basé sur la théorie du paramagnétisme de Brillouin qui incorpore l'interaction du spin avec le champ électrique dépendant du temps.

### 6.3.1 Moment orbital induit par le couplage entre le spin et le champ

Les moments magnétiques orbitaux sont proportionnels aux moments cinétiques par le biais du facteur de Larmor  $\gamma = \frac{e}{2m}$  :

$$\mathbf{m} = \gamma \mathbf{r} \wedge \mathbf{p}.$$

Lorsqu'on travaille avec l'impulsion généralisée  $\mathbf{p} - e\mathbf{A}$  d'un électron en présence d'un champ électromagnétique on fait apparaître deux contributions magnétiques :

$$\begin{aligned} \mathbf{m} &= \gamma \mathbf{r} \wedge \mathbf{p} - \gamma \mathbf{r} \wedge e\mathbf{A} \\ &= \boldsymbol{\mu}_{orb} + \boldsymbol{\mu}_{dia}. \end{aligned}$$

Le premier terme  $\boldsymbol{\mu}_{orb}$  correspond au paramagnétisme du moment orbital et le second  $\boldsymbol{\mu}_{dia}$  au diamagnétisme induit par le champ. Si on tient compte de l'expression de l'impulsion généralisée contenant la correction due à l'interaction spin-orbite :

$$\mathbf{P} = \mathbf{p} - e\mathbf{A} - \frac{e\hbar}{4mc^2} \boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E},$$

le moment magnétique total associé à la boucle de courant comprend un troisième terme :

$$\begin{aligned}\mathbf{m} &= \gamma(\mathbf{r} \wedge \mathbf{P}) = \gamma \left( \mathbf{r} \wedge \left( \mathbf{p} - e\mathbf{A} - \frac{e\hbar}{4mc^2} \boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E} \right) \right) \\ &= \gamma \mathbf{r} \wedge \mathbf{p} - \gamma \mathbf{r} \wedge e\mathbf{A} - \gamma \mathbf{r} \wedge \left( \frac{e\hbar}{4mc^2} \boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E} \right) \\ &= \boldsymbol{\mu}_{orb} + \boldsymbol{\mu}_{dia} + \boldsymbol{\mu}_{ind(E)},\end{aligned}$$

noté  $\boldsymbol{\mu}_{ind(E)}$  de sens opposé au moment orbital et induit par le champ électrique  $\mathbf{E}$ . Si on développe vectoriellement le terme  $\boldsymbol{\mu}_{ind(E)}$  on voit dans la formule (6.44) qu'il est porté par le champ électrique et par le spin que l'on maquille en magnéton de Bohr. Pour simplifier cette expression on se place dans une configuration où  $\mathbf{r}$  et  $\boldsymbol{\mu}_B$  restent perpendiculaires et on obtient (6.45) :

$$\begin{aligned}\boldsymbol{\mu}_{ind(E)} &= -\frac{e}{2m} \mathbf{r} \wedge \left( \frac{e\hbar}{4mc^2} \boldsymbol{\sigma} \wedge \mathbf{E} \right) = -\frac{e}{4mc^2} \mathbf{r} \wedge (\boldsymbol{\mu}_B \wedge \mathbf{E}) \\ &= -\frac{e}{4mc^2} ((\mathbf{r} \cdot \mathbf{E}) \boldsymbol{\mu}_B - (\mathbf{r} \cdot \boldsymbol{\mu}_B) \mathbf{E})\end{aligned}\quad (6.44)$$

$$\approx -\frac{e(\mathbf{r} \cdot \mathbf{E})}{4mc^2} \boldsymbol{\mu}_B.\quad (6.45)$$

L'effet de la correction relativiste se traduit sous la forme d'un diamagnétisme induit par le champ et porté par le spin (voir figure 6.7). On peut ajouter cette quantité au moment magnétique de spin  $\boldsymbol{\mu}_S = \boldsymbol{\mu}_B$  pour obtenir un moment magnétique  $\boldsymbol{\mu}'_S$

$$\boldsymbol{\mu}'_S = \boldsymbol{\mu}_B - \frac{e(\mathbf{r} \cdot \mathbf{E})}{4mc^2} \boldsymbol{\mu}_B = \boldsymbol{\mu}_B \left( 1 - \frac{e(\mathbf{r} \cdot \mathbf{E})}{4mc^2} \right).\quad (6.46)$$

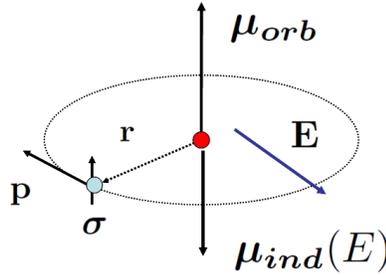


FIG. 6.7 – Moment magnétique induit par le champ électrique.

L'amplitude de la correction est alors un rapport entre l'énergie dipolaire et l'énergie de masse. Pour avoir une idée de la valeur de l'énergie dipolaire, on choisit de prendre pour le rayon vecteur  $\mathbf{r}$  le rayon caractéristique de Bohr  $a_B = \frac{4\pi\epsilon_0\hbar^2}{m_e e^2} = 52.9$  pm et de décrire le champ électrique  $\mathbf{E}$  comme le champ électrique du matériau  $\mathbf{E}_{mat}$  :

$$\begin{aligned}e(\mathbf{r} \cdot \mathbf{E}) &\equiv e a_B \mathbf{e}_r \cdot \mathbf{E}_{mat} = e a_B \mathbf{e}_r \cdot \left( \mathbf{E} + \frac{\mathbf{P}^{(1)}}{\epsilon_0} + \frac{\mathbf{P}^{(3)}}{\epsilon_0} \right) \\ &\equiv e a_B \mathbf{e}_r \cdot \left( \mathbf{E} + \chi^{(1)} \mathbf{E} + \chi^{(3)} \mathbf{E}^3 \right).\end{aligned}$$

Le moment magnétique  $\boldsymbol{\mu}'_S$  devient une fonction non-linéaire du champ externe :

$$\boldsymbol{\mu}'_S = \boldsymbol{\mu}_B \left( 1 - \frac{ea_B \mathbf{e}_r}{4mc^2} \cdot \left( (1 + \chi^{(1)}) \mathbf{E} + \chi^{(3)} \mathbf{E}^3 \right) \right). \quad (6.47)$$

### 6.3.2 Fonction de Brillouin

Pour avoir une idée de l'influence de cette perturbation on choisit d'utiliser la théorie du paramagnétisme de Brillouin. On garde cependant à l'esprit que cette description n'est pas rigoureuse car elle suppose que le système est à l'équilibre et que la température est définie, ce qui n'est pas le cas dans les hypothèses de désaimantation cohérente dans les régimes femto-seconde. Dans la théorie de Brillouin on considère  $N$  moments magnétiques  $\boldsymbol{\mu}_B$  plongés dans un champ magnétique  $\mathbf{B}$ . En présence du champ magnétique, un moment magnétique élémentaire possède deux états d'énergie  $E_{\pm}$  de probabilité  $p(E_{\pm})$  :

$$\begin{aligned} E_+ &= -\boldsymbol{\mu}_B \cdot \mathbf{B} & p(E_+) &= \frac{1}{Z} \exp\left(-\frac{E_+}{kT}\right) = \frac{1}{Z} \exp\left(\frac{\boldsymbol{\mu}_B \cdot \mathbf{B}}{kT}\right) \\ E_- &= \boldsymbol{\mu}_B \cdot \mathbf{B} & p(E_-) &= \frac{1}{Z} \exp\left(-\frac{E_-}{kT}\right) = \frac{1}{Z} \exp\left(-\frac{\boldsymbol{\mu}_B \cdot \mathbf{B}}{kT}\right), \end{aligned}$$

où  $Z = \exp(-E_+/kT) + \exp(-E_-/kT)$  est la fonction de partition du système. La moyenne statistique de l'aimantation paramagnétique vaut :

$$\begin{aligned} \mathbf{M} &= N \left( \frac{\boldsymbol{\mu}_B}{Z} \exp\left(-\frac{E_+}{kT}\right) - \frac{\boldsymbol{\mu}_B}{Z} \exp\left(-\frac{E_-}{kT}\right) \right) \\ &= N \boldsymbol{\mu}_B \tanh \left[ \frac{\boldsymbol{\mu}_B \cdot \mathbf{B}}{kT} \right]. \end{aligned}$$

En présence d'un champ électrique l'énergie du système est modifiée :

$$E'_{\pm} = \mp \boldsymbol{\mu}_B \cdot \mathbf{B} \left( 1 - \frac{ea_B \mathbf{e}_r}{4mc^2} \cdot \left( (1 + \chi^{(1)}) \mathbf{E} + \chi^{(3)} \mathbf{E}^3 \right) \right),$$

et on suppose qu'elle transforme la fonction de Brillouin pour un système à deux niveaux selon :

$$\mathbf{M}(E) = N \boldsymbol{\mu}_B \tanh \left[ \frac{\boldsymbol{\mu}_B \cdot \mathbf{B}}{kT} \left( 1 - \frac{ea_B \mathbf{e}_r}{4mc^2} \cdot \left( (1 + \chi^{(1)}) \mathbf{E} + \chi^{(3)} \mathbf{E}^3 \right) \right) \right]. \quad (6.48)$$

### 6.3.3 Résultats

On peut étudier à présent la formule (6.48) pour différentes amplitudes du champ électrique. Il nous reste à déterminer la valeur des différents paramètres. Le champ magnétique  $\mathbf{B}$  est fixé comme précédemment à  $\|\mathbf{B}\| = 1044$  T et est associé à une masse effective de  $0.3m_e$ . la température est prise à  $T_e = 1000$  K. On choisit de décrire les fonctions de réponse  $(1 + \chi^{(1)})$  et  $\chi^{(3)}$  de la même manière que dans l'étude de la réponse magnéto-optique dans la section (5.4.3) :

$$\begin{aligned} (1 + \chi^{(1)}) &\equiv 1 + \alpha_b^{(1)} + \alpha_f + \alpha_f \alpha_b^{(1)} (1 + \xi_b \xi_f) \\ \chi^{(3)} &\equiv \alpha_b^{(3)} + \alpha_b^{(3)} \alpha_f (1 + \xi_b \xi_f). \end{aligned}$$

Ces fonctions dépendent de la pulsation du champ électromagnétique  $\omega$  et on rappelle que dans [8] la pulsation centrale de l'impulsion laser est  $\omega_l = 2.36 * 10^{15} \text{ s}^{-1}$ . Cependant, on peut déjà montrer, que dans les conditions d'énergie absorbée maximum de [8], la correction relativiste que nous proposons

n'apporte rien. En effet, le champ électrique dans la matière est évalué à  $10^9$  V/m et le rapport entre énergie dipolaire et énergie de masse est bien trop faible :

$$\frac{ea_B \|\mathbf{E}_{mat}\|}{mc^2} \approx 4.6 * 10^{-9}. \quad (6.49)$$

On peut affirmer que dans ces régimes, la fonction de Brillouin n'est pas modifiée. En revanche, on peut réaliser une étude pour des amplitudes de champ électrique plus élevées. Contrairement aux équations de Bloch de la section (6.2.4), il n'existe pas de paramètres physique qui rendent cette étude absurde. On peut donc voir sur la figure 6.8 l'allure de la fonction  $\mathbf{M}(E)$  :

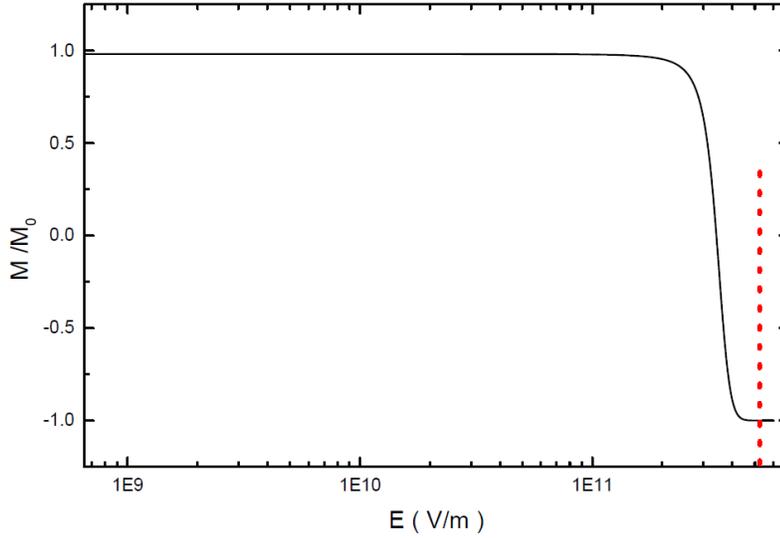


FIG. 6.8 – Fonction de Brillouin dépendant du champ électromagnétique externe. La ligne verticale correspond à la limite de l'ionisation de la matière.

Il apparaît bien, que dans les régimes d'excitation réalisés dans [8], il n'existe aucune modifications notables de la fonction de Brillouin. Cependant, pour des amplitudes de champ électrique très élevées, on observe bien une désaimantation. La gamme d'amplitude pour laquelle se produisent les premiers effets est celle correspondant aux valeurs de champ électrique nécessaires pour ioniser la matière. On fait d'ailleurs figurer la valeur critique associée au champ électrique à une distance du rayon de Bohr  $E_{a_B} = \frac{e}{4\pi\epsilon_0 a_B^2} = 5.14 * 10^{11}$  V/m.

### Commentaires

Nous avons construit un modèle académique très simple, qui incorpore l'interaction spin-orbite avec le champ externe, sous la forme d'un moment magnétique induit par le champ et porté par le spin. L'importance de cet effet se traduit par une compétition entre l'énergie de masse et l'énergie dipolaire électrique d'interaction avec le champ externe. Ce résultat peut sembler logique dans la mesure où la modification de l'aimantation est apportée par un effet relativiste. Dans les expériences de matière condensée, où les énergies mises en oeuvre restent faibles devant l'énergie de masse, les modifications notables de l'aimantation macroscopique ne se produisent que pour des champs électriques d'amplitude très élevées, pour lesquels la fonction de réponse non-linéaire du matériau est importante. Selon ce modèle, un effet serait observable dans le domaine des plasmas chauds pour lesquels la matière est

ionisée.

**Remarque relative au chapitre**

Dans ce chapitre nous avons essayé de proposer une première approche pour décrire la désaimantation cohérente. Cette thématique est récente et nécessite bien entendu, une réflexion plus aboutie. Nous avons proposé deux modèles incorporant les informations relatives à l'interaction spin-orbite avec le champ électromagnétique externe dépendant du temps. Dans les deux cas, nos résultats ne sont pas satisfaisants pour reproduire les résultats expérimentaux exposés dans [8].



## Annexe A

# Zitterbewegung

« La gravité par Ré mineur est un fait, uniquement par le fait qu'elle se justifie par elle même. La réciproque n'est pas valable. Ceci est lié à l'anti-matière. Surement. »

Jean-Baptiste Botul.

On présente quelques points liés au phénomène de Zitterbewegung. Malheureusement, ce sujet passionnant ne peut pas être étudié dans ces nombreux détails. On pourra s'en faire une idée dans les ouvrages [12], [3] ou [4] (liste bien entendu non exhaustive).

La théorie de Dirac permet de construire une équation quantique et relativiste pour décrire le comportement d'un électron. Nous avons vu dans le premier chapitre que le formalisme de Dirac était très performant mais au prix admettre l'existence d'une anti-particule : le positron, dont l'existence fut confirmée expérimentalement quelques années plus tard. Cette particularité se répercute dans les expressions de la vitesse ou de la position d'un électron relativiste. En plus de l'expression de la vitesse moyenne (ou de la position moyenne) s'ajoute un terme représentant une oscillation très rapide. On ne démontre pas ici cette expression. On note juste qu'à partir de la définition  $\mathbf{v} = c\boldsymbol{\alpha}$ , l'intégration de l'équation d'Ehrenfest  $\frac{d\mathbf{v}}{dt} = \frac{i}{\hbar} [H, c\boldsymbol{\alpha}]$  (avec  $H$  le hamiltonien de Dirac) conduit à [12] :

$$\mathbf{v}(t) = \frac{c^2\mathbf{p}}{H} + e^{2iHt/\hbar} \left( c\boldsymbol{\alpha} - \frac{c^2\mathbf{p}}{H} \right),$$

qui représente l'opérateur vitesse de la particule. En intégrant cette dernière équation on obtient l'évolution de l'opérateur position au cours du temps :

$$\mathbf{r}(t) = \frac{c^2\mathbf{p}}{H}t + \frac{\hbar}{2iH}e^{2iHt/\hbar} \left( c\boldsymbol{\alpha} - \frac{c^2\mathbf{p}}{H} \right).$$

Le premier terme correspond à la position moyenne de la particule correspondant à son équivalent classique relativiste. Le second terme se présente sous la forme d'une oscillation dont la pulsation est supérieure ou égale à  $2mc^2/\hbar = 1.8 * 10^{21} \text{ s}^{-1}$ . Ainsi, en plus de sa trajectoire classique au cours du temps, l'électron effectue un mouvement d'oscillation. Ce phénomène découvert par Erwin Schrödinger fut baptisé **Zitterbewegung**, mouvement de tremblement en allemand. Dans la limite non-relativiste l'amplitude de ces oscillations est de l'ordre de la longueur d'onde Compton  $\lambda_C = \frac{h}{mc}$  [3] :

$$\mathbf{r}(t) \approx \frac{c^2\mathbf{p}}{H}t + \left| \frac{h}{2mc} \right| e^{2iHt/\hbar}.$$

L'électron est alors confiné dans une sphère de rayon égal à la longueur d'onde Compton (à une dimension c'est un tube).

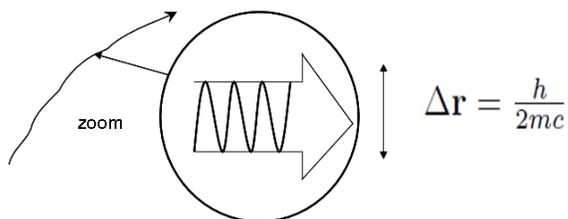


FIG. A.1 – Le mouvement de tremblement : Zitterbewegung (1 dimension)

Etant donnée la très faible période d'oscillation, ce phénomène n'est pas observable et son existence reste pour l'instant une question d'interprétation.

- Ce terme oscillant peut être interprété comme une interférence entre les fonctions d'onde du positron et de l'électron.
- On peut aussi souligner, que ce mouvement tremblant résulte d'une définition non approprié de l'opérateur position en mécanique quantique non relativiste. Cette remarque vaut aussi pour l'opérateur de spin.

## Annexe B

# Transformation de Foldy-Wouthuysen

Cette annexe sur la transformation de Foldy-Wouthuysen comporte trois points détaillés concernant des étapes de calcul présentés dans la section (1.2)

- i) Le passage de l'équation (1.35) à l'équation (1.36).
- ii) Le détail des calculs permettant d'aboutir aux équations (1.39) et (1.47)
- iii) Les éléments de calculs permettant d'obtenir les équations (1.57), (1.58), (1.61) et (1.62)

### i) Passage de l'équation (1.35) à l'équation (1.36)

$$\begin{aligned}
 H' &= \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^n}{n!} \Omega_n(S, H) + i\hbar \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^{n+1}}{(n+1)!} \Omega_n(S, \partial_t S) \\
 &= H + \sum_{n=1}^{\infty} \frac{i^n}{n!} \Omega_n(S, H) + i\hbar \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^{n+1}}{(n+1)!} \Omega_n(S, \partial_t S) \\
 &= H + \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^{n+1}}{(n+1)!} \Omega_{n+1}(S, H) + i\hbar \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^{n+1}}{(n+1)!} \Omega_n(S, \partial_t S) \\
 &= H + \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^{n+1}}{(n+1)!} \Omega_n(S, [S, H]) + i\hbar \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^{n+1}}{(n+1)!} \Omega_n(S, \partial_t S) \\
 &= H + \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^{n+1}}{(n+1)!} \Omega_n \left( S, \frac{i\hbar}{\hbar} [S, H] \right) + i\hbar \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^{n+1}}{(n+1)!} \Omega_n(S, \partial_t S) \\
 &= H + i \frac{\hbar}{i} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^n}{(n+1)!} \Omega_n \left( S, \frac{i}{\hbar} [S, H] \right) + i^2 \hbar \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^n}{(n+1)!} \Omega_n(S, \partial_t S) \\
 &= H - \hbar \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^n}{(n+1)!} \Omega_n \left( S, \frac{i}{\hbar} [H, S] \right) - \hbar \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^n}{(n+1)!} \Omega_n(S, \partial_t S) \\
 &= H - \hbar \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^n}{(n+1)!} \Omega_n \left( S, \frac{i}{\hbar} [H, S] + \partial_t S \right)
 \end{aligned}$$

Avec  $H = T + V + mc^2\beta$  et  $\dot{S} = \frac{i}{\hbar}[V, S] + \partial_t S$  on peut écrire :

$$\begin{aligned}
H' &= T + V + mc^2\beta - \hbar \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^n}{(n+1)!} \Omega_n \left( S, \frac{i}{\hbar}[T + V + mc^2\beta, S] + \partial_t S \right) \\
&= T + V + mc^2\beta - \hbar \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^n}{(n+1)!} \Omega_n \left( S, \frac{i}{\hbar}[T + mc^2\beta, S] \right) - \hbar \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^n}{(n+1)!} \Omega_n \left( S, \frac{i}{\hbar}[V, S] + \partial_t S \right) \\
&= T + V + mc^2\beta + \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^n}{(n+1)!} \Omega_n(S, i[S, T + mc^2\beta]) - \hbar \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^n}{(n+1)!} \Omega_n(S, \dot{S}) \\
&= T + V + mc^2\beta + \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^{n+1}}{(n+1)!} \Omega_{n+1}(S, T + mc^2\beta) - \hbar \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^n}{(n+1)!} \Omega_n(S, \dot{S}) \\
&= V + T + mc^2\beta + \sum_{n=1}^{\infty} \frac{i^n}{n!} \Omega_n(S, T + mc^2\beta) - \hbar \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^n}{(n+1)!} \Omega_n(S, \dot{S}) \\
&= V + \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^n}{n!} \Omega_n(S, T + mc^2\beta) - \hbar \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^n}{n!(n+1)} \Omega_n(S, \dot{S}) \\
&= V + \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^n}{n!} \Omega_n(S, mc^2\beta) + \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^n}{n!} \Omega_n \left( S, T - \frac{\hbar}{n+1} \dot{S} \right) \\
&= V + mc^2\beta \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^n}{n!} (-2iS)^n + \sum_{n=0}^{\infty} \frac{i^n}{n!} \Omega_n \left( S, T - \frac{\hbar}{n+1} \dot{S} \right)
\end{aligned}$$

## ii) TFW troisième ordre : obtention de (1.39) et (1.47)

### Calcul du hamiltonien impair

Soit le développement exact du hamiltonien impair :

$$H'_i = mc^2\beta \sum_{n=1,3,5} \frac{(-2iS)^n}{n!} + \sum_{n=0,2,4} \frac{i^n}{n!} \Omega_n \left( S, T - \frac{\hbar \dot{S}}{n+1} \right). \quad (\text{B.1})$$

Pour obtenir l'expression complète au second ordre en  $(1/m)$  on doit développer l'expression jusqu'à  $n = 3$  mais en négligeant le terme  $\Omega_2(S, \dot{S}) = [S, [S, \dot{S}]]$  qui est du troisième ordre. On obtient bien :

$$H'_i = mc^2\beta \left( -2iS + \frac{4}{3}iS^3 \right) + \Omega_0(S, T - \hbar \dot{S}) - \frac{1}{2} \Omega_2(S, T) + \vartheta(m^{-3}).$$

Ensuite, pour le premier terme qui contient le facteur  $mc^2\beta$  les opérateurs  $S$  et  $S^3$  doivent être développés au troisième ordre. On calcule :

$$S = S_1 m^{-1} + S_2 m^{-2} + S_3 m^{-3} + \vartheta(m^{-4}), \quad (\text{B.2})$$

$$\begin{aligned}
S^2 &= S \cdot S = (S_1 m^{-1} + S_2 m^{-2} + S_3 m^{-3})(S_1 m^{-1} + S_2 m^{-2} + \dots) \\
&\approx S_1^2 m^{-2} + (S_1 S_2 + S_2 S_1) m^{-3} + \vartheta(m^{-4}), \quad (\text{B.3})
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
S^3 &= S^2 \cdot S = (S_1^2 m^{-2} + (S_1 S_2 + S_2 S_1) m^{-3})(S_1 m^{-1} + \dots) \\
&\approx S_1^3 m^{-3} + \vartheta(m^{-4}). \quad (\text{B.4})
\end{aligned}$$

Ainsi en remplaçant  $S$  par (B.2) et  $S^3$  par (B.4) le premier terme devient :

$$mc^2\beta \left( -2iS + \frac{4}{3}iS^3 \right) = c^2\beta \left( -2iS_1 - 2iS_2m^{-1} + \left( -2iS_3 + \frac{4}{3}S_1^3 \right) m^{-2} \right). \quad (\text{B.5})$$

Ensuite le second terme  $\Omega_0(S, T - \hbar\dot{S}) = T - \hbar\dot{S}$  s'écrit simplement :

$$\Omega_0(S, T - \hbar\dot{S}) = T - \hbar \left( \dot{S}_1 m^{-1} + \dot{S}_2 m^{-2} \right). \quad (\text{B.6})$$

Enfin le dernier terme, compte tenu de l'expression (B.3) de  $S^2$  au second ordre vaut :

$$\begin{aligned} -\frac{1}{2}\Omega_2(S, T) &= -\frac{1}{2} (S^2T - STS + TS^2) \\ &\approx -\frac{1}{2} (S_1^2T - S_1TS_1 + TS_1^2) m^{-2} \\ &\approx -\frac{1}{2}\Omega_2(S_1, T) m^{-2}. \end{aligned} \quad (\text{B.7})$$

En sommant (B.5) , (B.6) et (B.7) on retrouve bien :

$$\begin{aligned} H'_i &= m^{-0} (-2ic^2\beta S_1 + T) + m^{-1} (-2ic^2\beta S_2 - \hbar\dot{S}_1) \\ &\quad + m^{-2} \left( -2ic^2\beta S_3 + \frac{4ic^2}{3}\beta S_1^3 - \hbar\dot{S}_2 - \frac{1}{2}\Omega_2(S_1, T) \right) + \vartheta(m^{-3}) \end{aligned}$$

### Calcul du hamiltonien pair

Ensuite partant du développement exact du hamiltonien pair :

$$H'_p = V + mc^2\beta \sum_{n=0,2,4} \frac{(-2iS)^n}{n!} + \sum_{n=1,3,5} \frac{i^n}{n!} \Omega_n \left( S, T - \frac{\hbar\dot{S}}{n+1} \right). \quad (\text{B.8})$$

Obtenir la partie du troisième ordre consiste à stopper le développement pour  $n = 4$  :

$$H'_p = V + mc^2\beta \left( 1 + \frac{(-2iS)^2}{2!} + \frac{(-2iS)^4}{4!} \right) + i\Omega_1(S, T - \frac{\hbar}{2}\dot{S}) - i\frac{1}{3!}\Omega_3(S, T) + \vartheta(m^{-4})$$

Le deuxième terme qui contient le facteur  $mc^2\beta$  nécessite de développer les opérateurs  $S^2$  et  $S^4$  au quatrième ordre. On calcule :

$$S = S_1m^{-1} + S_2m^{-2} + S_3m^{-3} + S_4m^{-4} + \vartheta(m^{-5}), \quad (\text{B.9})$$

$$\begin{aligned} S^2 &= S \cdot S = (S_1m^{-1} + S_2m^{-2} + S_3m^{-3} + S_4m^{-4})(S_1m^{-1} + S_2m^{-2} + S_3m^{-3} + \dots) \\ &\approx S_1^2m^{-2} + (S_1S_2 + S_2S_1)m^{-3} + (S_1S_3 + S_2S_2 + S_3S_1)m^{-4} \\ &\approx S_1^2m^{-2} + \{S_1, S_2\}m^{-3} + (\{S_1, S_3\} + S_2^2)m^{-4} + \vartheta(m^{-5}), \end{aligned} \quad (\text{B.10})$$

$$\begin{aligned} S^3 &= S^2 \cdot S = (S_1^2m^{-2} + (S_1S_2 + S_2S_1)m^{-3} + \dots)(S_1m^{-1} + S_2m^{-2} + \dots) \\ &\approx S_1^3m^{-3} + (S_1^2S_2 + S_1S_2S_1 + S_2S_1^2)m^{-4} + \vartheta(m^{-5}), \end{aligned} \quad (\text{B.11})$$

$$\begin{aligned} S^4 &= S^3 \cdot S = (S_1^3m^{-3} + (S_1^2S_2 + S_1S_2S_1 + S_2S_1^2)m^{-4})(S_1m^{-1} + \dots) \\ &\approx S_1^4m^{-4} + \vartheta(m^{-5}). \end{aligned} \quad (\text{B.12})$$

En remplaçant  $S_2$  par (B.10) et  $S_4$  par (B.12) le deuxième terme devient :

$$mc^2\beta \left( 1 + \frac{(-2iS)^2}{2!} + \frac{(-2iS)^4}{4!} \right) \approx c^2\beta \left( m - i(S_1^2 m^{-1} + \{S_1, S_2\} m^{-2} + (\{S_1, S_3\} + S_2^2 + \frac{1}{3}S_1^4) m^{-4}) \right). \quad (\text{B.13})$$

Le terme  $i\Omega_1(S, T - \frac{\hbar}{2}\dot{S})$  se décompose selon :

$$\Omega_1(S, T - \frac{\hbar}{2}\dot{S}) = i\Omega_1(S, T) - \frac{i\hbar}{2}\Omega_1(S, \dot{S}),$$

avec

$$\begin{aligned} i\Omega_1(S, T) &= i[S_1 m^{-1} + S_2 m^{-2} + S_3 m^{-3}, T] \\ &= i[S_1, T] m^{-1} + i[S_2, T] m^{-2} + i[S_3, T] m^{-3} \\ &= i\Omega_1(S_1, T) m^{-1} + i\Omega_1(S_2, T) m^{-2} + i\Omega_1(S_3, T) m^{-3}, \end{aligned} \quad (\text{B.14})$$

et

$$\begin{aligned} -\frac{i\hbar}{2}\Omega_1(S, \dot{S}) &= -\frac{i\hbar}{2}[(S_1 m^{-1} + S_2 m^{-2} + S_3 m^{-3}), (\dot{S}_1 m^{-1} + \dot{S}_2 m^{-2} + \dot{S}_3 m^{-3})] \\ &\approx -\frac{i\hbar}{2}([S_1, \dot{S}_1] m^{-2} + ([S_1, \dot{S}_2] + [S_2, \dot{S}_1]) m^{-3}) \\ &\approx -\frac{i\hbar}{2}(\Omega_1(S_1, \dot{S}_1) m^{-2} + (\Omega_1(S_1, \dot{S}_2) + \Omega_1(S_2, \dot{S}_1)) m^{-3}). \end{aligned} \quad (\text{B.15})$$

Ensuite on voit aisément d'après (B.11) que :

$$-\frac{i}{3!}\Omega_3(S, T) = -\frac{i}{3!}[S, [S, [S, T]]] \approx -\frac{i}{3!}[S_1, [S_1, [S_1, T]]] m^{-3} \approx -\frac{i}{3!}\Omega_3(S_1, T) m^{-3}. \quad (\text{B.16})$$

Ainsi en regroupant les termes (B.13) , (B.14), (B.15) et (B.16) on retrouve en effet :

$$\begin{aligned} H'_p &= V + mc^2\beta + m^{-1}(-2c^2\beta S_1^2 + i\Omega_1(S_1, T)) + m^{-2} \left( -2c^2\beta\{S_1, S_2\} - \frac{i\hbar}{2}\Omega_1(S_1, \dot{S}_1) \right. \\ &\quad \left. + i\Omega_1(S_2, T) \right) + m^{-3} \left( -2c^2\beta(S_2^2 + \{S_1, S_3\} - \frac{1}{3}S_1^4) - \frac{i\hbar}{2}\Omega_1(S_1, \dot{S}_2) - \frac{i\hbar}{2}\Omega_1(S_2, \dot{S}_1) \right. \\ &\quad \left. + i\Omega_1(S_3, T) - \frac{i}{6}\Omega_3(S_1, T) \right) + \vartheta(m^{-4}). \end{aligned} \quad (\text{B.17})$$

### iii) TFW cinquième ordre : éléments de calculs

La procédure pour obtenir les hamiltoniens impairs à l'ordre quatre et pair à l'ordre cinq est strictement identique à ce que nous venons de montrer en détail pour le troisième ordre. Elle est cependant plus longue et donc plus difficile. On ne détaillera pas l'ensemble des calculs mais on se contentera de donner les éléments nécessaires qui permettent d'aboutir aux équations (1.57), (1.58), (1.61) et (1.62). On part donc des deux équations suivantes qu'il faut développer respectivement aux quatrième

et cinquième ordre :

$$\begin{aligned}
H'_i &= mc^2\beta \left( -2iS + \frac{4}{3}iS^3 + \frac{4}{15}iS^5 \right) + \Omega_0(S, T - \hbar\dot{S}) \\
&\quad + \frac{1}{2}\Omega_2(S, T - \frac{\hbar\dot{S}}{3}) + \frac{1}{4!}\Omega_4(S, T - \frac{\hbar\dot{S}}{5}) + \vartheta(m^{-5}) \\
H'_p &= V + mc^2\beta \left( 1 + \frac{(-2iS)^2}{2!} + \frac{(-2iS)^4}{4!} + \frac{(-2iS)^6}{6!} \right) \\
&\quad + i\Omega_1(S, T - \frac{\hbar\dot{S}}{2}) - i\frac{1}{3!}\Omega_3(S, T - \frac{\hbar\dot{S}}{4}) + i\frac{1}{5!}\Omega_5(S, T) + \vartheta(m^{-6})
\end{aligned}$$

En observant les puissances de  $S$  qui interviennent dans les deux expressions on voit qu'il va falloir développer les opérateurs  $S$ ,  $S^3$  et  $S^5$  aux cinquième ordre et les opérateurs  $S^2$ ,  $S^4$  et  $S^6$  au sixième ordre. Ce qui donne après calculs :

$$\begin{aligned}
S &= S_1m^{-1} + S_2m^{-2} + S_3m^{-3} + S_4m^{-4} + S_5m^{-5} + \vartheta(m^{-6}) \\
S^2 &= S_1^2m^{-2} + \{S_1, S_2\}m^{-3} + (\{S_1, S_3\} + S_2^2)m^{-4} + (\{S_1, S_4\} + \{S_2, S_3\})m^{-5} \\
&\quad + (\{S_1, S_5\} + \{S_2, S_4\} + S_3^2)m^{-6} + \vartheta(m^{-7}) \\
S^3 &= S_1^3m^{-3} + (\{S_1^2, S_2\} + S_1S_2S_1)m^{-4} + (S_1S_3S_1 + \{S_3, S_1^2\} + \{S_2^2, S_1\} + S_1S_2S_1)m^{-5} + \vartheta(m^{-6}) \\
S^4 &= S_1^4m^{-4} + (S_1^2S_2S_1 + \{S_2, S_1^3\} + S_1S_2S_1^2)m^{-5} \\
&\quad + ((S_1S_3S_1 + \{S_3, S_1^2\} + \{S_2^2, S_1\} + S_1S_2S_1)S_1 + (\{S_1^2, S_2\} + S_1S_2S_1)S_2)m^{-6} + \vartheta(m^{-7}) \\
S^5 &= S_1^5m^{-5} + \vartheta(m^{-6}) \\
S^6 &= S_1^6m^{-6} + \vartheta(m^{-7})
\end{aligned}$$

Ensuite il est intéressant de remarquer que la fonction  $\Omega_n(S, T)$  peut se développer selon :

$$\Omega_n(S, T) = \sum_{k=0}^n (-1)^k C_n^k S^{n-k} T S^k, \quad (\text{B.18})$$

ce qui se vérifie facilement :

$$\begin{aligned}
\Omega_1(S, T) &= [S, T] = ST - TS \\
\Omega_2(S, T) &= [S, [S, T]] = [S, (ST - TS)] = S^2T - 2STS + TS^2 \\
\Omega_3(S, T) &= [S, [S, [S, T]]] = [S, (S^2T - 2STS - TS^2)] = S^3T - 3S^2TS + 3STS^2 - TS^3 \\
\Omega_4(S, T) &= S^4T - 4S^3TS + 6S^2TS^2 - 4STS^3 + TS^4 \\
\Omega_4(S, T) &= S^5T - 5S^4TS + 10S^2TS^3 - 10S^3TS^2 + 5STS^4 - TS^5.
\end{aligned}$$

En effet pour le calcul des fonctions de type  $\Omega_n(S, X)$  avec  $n = 1, 2, 3, 4, 5$  et  $X = T, \dot{S}$  on devra travailler avec les puissances de l'opérateur  $S$  qui est une somme de produits de différents opérateurs comme ceci est détaillé au dessus. Ainsi dans un développement de type  $\Omega_n(S, X)$  où l'on note  $S = AB\dots N$  produit de  $n$  opérateurs le développement sera du type :

$$\begin{aligned}
\Omega_n(S, X) &= \Omega_n(AB\dots N, X) \\
&= AB\dots NX - C_n^1 AB\dots (N-1)XN + \dots + (-1)^{n-1} C_n^{n-1} AXB\dots N + (-1)^n XAB\dots N
\end{aligned}$$



## Annexe C

# Dérivation des équations de Hartree

On considère un système de  $N$  électrons en interaction coulombienne. Le système total est décrit par une équation de Schrödinger stationnaire (C.1). Le hamiltonien **exact** du problème est donné par (C.2) où  $K_{ij} = K_{ji}$ . La fonction d'onde du système est décrite dans **l'approximation de Hartree** comme produit de fonctions d'ondes mono-électroniques (C.3).

$$H\Psi = E\Psi, \quad (C.1)$$

$$H = \sum_{i=1}^N \frac{p_i^2}{2m} + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j}^N \frac{e^2}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} = \sum_{i=1}^N T_i + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j}^N K_{ij}, \quad (C.2)$$

$$\Psi = \Psi(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_N) = \phi_1(\mathbf{r}_1)\phi_2(\mathbf{r}_2)\dots\phi_N(\mathbf{r}_N). \quad (C.3)$$

La condition de normalisation est :

$$\begin{aligned} \langle \Psi | \Psi \rangle &= \int d\mathbf{r}_1 \int d\mathbf{r}_2 \dots \int d\mathbf{r}_N \phi_1^\dagger(\mathbf{r}_1)\phi_2^\dagger(\mathbf{r}_2)\dots\phi_N^\dagger(\mathbf{r}_N)\phi_1(\mathbf{r}_1)\phi_2(\mathbf{r}_2)\dots\phi_N(\mathbf{r}_N) \\ &= \int d\mathbf{r}_1 \phi_1^\dagger(\mathbf{r}_1)\phi_1(\mathbf{r}_1) \int d\mathbf{r}_2 \phi_2^\dagger(\mathbf{r}_2)\phi_2(\mathbf{r}_2) \dots \int d\mathbf{r}_N \phi_N^\dagger(\mathbf{r}_N)\phi_N(\mathbf{r}_N) \\ &= \langle \phi_1 | \phi_1 \rangle \langle \phi_2 | \phi_2 \rangle \dots \langle \phi_N | \phi_N \rangle \\ &= 1^N = 1. \end{aligned} \quad (C.4)$$

La valeur moyenne de l'énergie est calculée en multipliant à gauche (C.1) par le bra  $\langle \Psi |$ . On en déduit l'expression de l'énergie  $E$  du système, qui compte tenu de (C.4) donne :

$$\langle \Psi | H | \Psi \rangle = \langle \Psi | E | \Psi \rangle = E \langle \Psi | \Psi \rangle \quad \Leftrightarrow \quad E = \frac{\langle \Psi | H | \Psi \rangle}{\langle \Psi | \Psi \rangle} = \langle \Psi | H | \Psi \rangle.$$

On développe l'expression de la valeur moyenne :

$$\begin{aligned} \langle H \rangle &= \int d\mathbf{r}_1 \int d\mathbf{r}_2 \dots \int d\mathbf{r}_N \phi_1^\dagger(\mathbf{r}_1)\phi_2^\dagger(\mathbf{r}_2)\dots\phi_N^\dagger(\mathbf{r}_N) \left( \sum_{i=1}^N \frac{p_i^2}{2m} \right) \phi_1(\mathbf{r}_1)\phi_2(\mathbf{r}_2)\dots\phi_N(\mathbf{r}_N) \\ &\quad + \int d\mathbf{r}_1 \int d\mathbf{r}_2 \dots \int d\mathbf{r}_N \phi_1^\dagger(\mathbf{r}_1)\phi_2^\dagger(\mathbf{r}_2)\dots\phi_N^\dagger(\mathbf{r}_N) \left( \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j}^N \frac{e^2}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} \right) \phi_1(\mathbf{r}_1)\phi_2(\mathbf{r}_2)\dots\phi_N(\mathbf{r}_N). \end{aligned} \quad (C.5)$$

$$\begin{aligned}
\langle H \rangle &= \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_1 \phi_1^\dagger(\mathbf{r}_1) \phi_1(\mathbf{r}_1) \dots \int d\mathbf{r}_i \phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \frac{p_i^2}{2m} \phi_i(\mathbf{r}_i) \dots \int d\mathbf{r}_N \phi_N^\dagger(\mathbf{r}_N) \phi_N(\mathbf{r}_N) \\
&\quad + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_1 \phi_1^\dagger(\mathbf{r}_1) \phi_1(\mathbf{r}_1) \dots \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j \phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{e^2 \phi_i(\mathbf{r}_i) \phi_j(\mathbf{r}_j)}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} \dots \int d\mathbf{r}_N \phi_N^\dagger(\mathbf{r}_N) \phi_N(\mathbf{r}_N)
\end{aligned} \tag{C.6}$$

$$= \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i \phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \frac{p_i^2}{2m} \phi_i(\mathbf{r}_i) + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j \phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{e^2}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} \phi_i(\mathbf{r}_i) \phi_j(\mathbf{r}_j). \tag{C.7}$$

Le passage de (C.5) à (C.6) se réalise en remarquant que dans la partie cinétique l'opérateur  $\mathbf{p}_i^2$  n'agit pas sur les fonctions  $\phi_j(\mathbf{r}_j)$ . De la même manière, pour la partie potentielle, l'opérateur  $|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|^{-1}$  impose de ne garder uniquement que les fonctions  $\phi_i(\mathbf{r}_i)$  et  $\phi_j(\mathbf{r}_j)$  dans la double intégrale. On passe de (C.6) à (C.7) à l'aide de la condition de normalisation  $\langle \phi_i | \phi_i \rangle = 1$  :

$$E = \langle H \rangle = \sum_{i=1}^N \langle T_i \rangle + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} \langle K_{ij} \rangle .$$

On cherche à déterminer  $\phi_i$  et  $\phi_i^\dagger$  de telle sorte que  $E(\phi_i^\dagger, \phi_i)$  soit minimale. On utilise la méthode de Lagrange en fabriquant la fonctionnelle  $F(\phi_i^\dagger, \phi_i)$  à l'aide des contraintes de normalisation pour chaque fonction d'onde  $\phi_i$ , où les  $\epsilon_i$  sont les multiplicateurs de Lagrange :

$$\begin{aligned}
F(\phi_i^\dagger, \phi_i) &= E(\phi_i^\dagger, \phi_i) - \sum_{i=1}^N \epsilon_i \int d\mathbf{r}_i \phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \phi_i(\mathbf{r}_i) \\
&= \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i \phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \left( \frac{p_i^2}{2m} - \epsilon_i \right) \phi_i(\mathbf{r}_i) + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j \phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{e^2 \phi_i(\mathbf{r}_i) \phi_j(\mathbf{r}_j)}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|}.
\end{aligned} \tag{C.8}$$

On minimise ensuite  $F(\phi_i^\dagger, \phi_i)$  par rapport à  $\phi_i$  et  $\phi_i^\dagger$  de manière à obtenir une équation du type :

$$\delta F(\phi_i^\dagger, \phi_i) = \sum_{i=1}^N \delta \phi_i^\dagger [\hat{g}_i \phi_i] + \delta \phi_i [\hat{h}_i \phi_i^\dagger] = 0. \tag{C.9}$$

La minimisation est réalisée à partir de (C.8) en remarquant que  $\langle T_i \rangle$  est un produit de fonctions de  $\phi_i$  et de  $\phi_i^\dagger$ , et que  $\langle K_{ij} \rangle$  est un produit des 4 fonctions  $\phi_i$ ,  $\phi_j$ ,  $\phi_i^\dagger$  et  $\phi_j^\dagger$ . On obtient alors :

$$\begin{aligned}
\delta F(\phi_i^\dagger, \phi_i) &= \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i \delta\phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \left( \frac{p_i^2}{2m} - \epsilon_i \right) \phi_i(\mathbf{r}_i) + \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i \phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \left( \frac{p_i^2}{2m} - \epsilon_i \right) \delta\phi_i(\mathbf{r}_i) \\
&+ \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j \left( \delta\phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) + \phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \delta\phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \right) \frac{e^2 \phi_i(\mathbf{r}_i) \phi_j(\mathbf{r}_j)}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} \\
&+ \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j \frac{\phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) e^2}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} (\delta\phi_i(\mathbf{r}_i) \phi_j(\mathbf{r}_j) + \phi_i(\mathbf{r}_i) \delta\phi_j(\mathbf{r}_j)) \quad (C.10) \\
&= \sum_{i=1}^N \langle T_i(\delta\phi_i^\dagger, \phi_i) \rangle + \sum_{i=1}^N \langle T_i(\phi_i^\dagger, \delta\phi_i) \rangle + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} \langle K_{ij}(\delta\phi_i^\dagger, \delta\phi_j^\dagger, \phi_i, \phi_j) \rangle \\
&+ \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} \langle K_{ij}(\phi_i^\dagger, \phi_j^\dagger, \delta\phi_i, \delta\phi_j) \rangle.
\end{aligned}$$

Or, on peut simplifier l'équation (C.10) en remarquant que :

$$\begin{aligned}
\frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} \langle K_{ij}(\delta\phi_i^\dagger, \delta\phi_j^\dagger, \phi_i, \phi_j) \rangle &= \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j \left( \delta\phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) + \phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \delta\phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \right) \frac{e^2 \phi_i(\mathbf{r}_i) \phi_j(\mathbf{r}_j)}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} \\
&= \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j \delta\phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{e^2}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} \phi_j(\mathbf{r}_j) \phi_i(\mathbf{r}_i) \\
&\equiv V_{ij}. \quad (C.11)
\end{aligned}$$

La preuve en est donnée si on raisonne sur un système à deux électrons. Partons du terme de gauche de l'identité (C.11) en posant  $N = 2$  et développons l'ensemble des termes. On obtient 4 termes numérotés (C.12), (C.13), (C.14) et (C.15) :

$$\begin{aligned}
V_{12} &= \frac{1}{2} \sum_{i=1}^2 \sum_{i \neq j} \int \int d\mathbf{r}_i d\mathbf{r}_j \left( \delta\phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) + \phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \delta\phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \right) \frac{e^2}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} \phi_i(\mathbf{r}_i) \phi_j(\mathbf{r}_j) \\
&= \frac{1}{2} \left( \int d\mathbf{r}_1 \int d\mathbf{r}_2 \delta\phi_1^\dagger(\mathbf{r}_1) \phi_2^\dagger(\mathbf{r}_2) \frac{e^2}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} \phi_1(\mathbf{r}_1) \phi_2(\mathbf{r}_2) \right. \quad (C.12)
\end{aligned}$$

$$\left. + \int d\mathbf{r}_1 \int d\mathbf{r}_2 \phi_1^\dagger(\mathbf{r}_1) \delta\phi_2^\dagger(\mathbf{r}_2) \frac{e^2}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} \phi_1(\mathbf{r}_1) \phi_2(\mathbf{r}_2) \right) \quad (C.13)$$

$$\left. + \int d\mathbf{r}_2 \int d\mathbf{r}_1 \delta\phi_2^\dagger(\mathbf{r}_2) \phi_1^\dagger(\mathbf{r}_1) \frac{e^2}{|\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1|} \phi_2(\mathbf{r}_2) \phi_1(\mathbf{r}_1) \right) \quad (C.14)$$

$$\left. + \int d\mathbf{r}_2 \int d\mathbf{r}_1 \phi_2^\dagger(\mathbf{r}_2) \delta\phi_1^\dagger(\mathbf{r}_1) \frac{e^2}{|\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1|} \phi_2(\mathbf{r}_2) \phi_1(\mathbf{r}_1) \right). \quad (C.15)$$

Par permutation de variables muettes on remarque que le terme (C.12) est identique au terme (C.14) et que le terme (C.13) est identique au terme (C.15). Ainsi :

$$\begin{aligned}
V_{12} &= \int d\mathbf{r}_1 \int d\mathbf{r}_2 \delta\phi_1^\dagger(\mathbf{r}_1) \phi_2^\dagger(\mathbf{r}_2) \frac{e^2 \phi_1(\mathbf{r}_1) \phi_2(\mathbf{r}_2)}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} + \int d\mathbf{r}_1 \int d\mathbf{r}_2 \phi_1^\dagger(\mathbf{r}_1) \delta\phi_2^\dagger(\mathbf{r}_2) \frac{e^2 \phi_1(\mathbf{r}_1) \phi_2(\mathbf{r}_2)}{|\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1|} \\
&= \sum_{i=1}^2 \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j \delta\phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{e^2}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} \phi_j(\mathbf{r}_j) \phi_i(\mathbf{r}_i)
\end{aligned}$$

Un raisonnement similaire est appliqué au terme  $\frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} \langle K_{ij}(\phi_i^\dagger, \phi_j^\dagger, \delta\phi_i, \delta\phi_j) \rangle$  ce qui permet de réécrire (C.10) selon :

$$\begin{aligned} \delta F(\phi_i^\dagger, \phi_i) &= \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i \delta\phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \left( \frac{p_i^2}{2m} - \epsilon_i \right) \phi_i(\mathbf{r}_i) + \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i \phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \left( \frac{p_i^2}{2m} - \epsilon_i \right) \delta\phi_i(\mathbf{r}_i) \\ &+ \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j \delta\phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{e^2}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} \phi_i(\mathbf{r}_i) \phi_j(\mathbf{r}_j) \\ &+ \sum_{i=1}^N \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_i \int d\mathbf{r}_j \phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \frac{e^2}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} \delta\phi_i(\mathbf{r}_i) \phi_j(\mathbf{r}_j). \end{aligned}$$

On regroupe ensuite les termes contenant  $\delta\phi_i^\dagger$  et  $\delta\phi_i$  pour obtenir une forme comparable à (C.9) :

$$\begin{aligned} \delta F(\phi_i^\dagger, \phi_i) &= \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i \delta\phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \left[ \left( \frac{p_i^2}{2m} - \epsilon_i \right) + \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \frac{e^2 \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \phi_j(\mathbf{r}_j)}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} \right] \phi_i(\mathbf{r}_i) \\ &+ \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i \left[ \phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \left( \frac{p_i^2}{2m} - \epsilon_i \right) \delta\phi_i(\mathbf{r}_i) + \delta\phi_i(\mathbf{r}_i) \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \frac{e^2 \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \phi_j(\mathbf{r}_j)}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} \phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \right]. \end{aligned}$$

On voit que la minimisation par rapport à  $\delta\phi_i^\dagger$  respecte la forme  $\delta\phi_i^\dagger[\hat{g}_i\phi_i]$  dans (C.9) mais pas celle par rapport à  $\delta\phi_i$  car il faudrait permuter  $\phi_i^\dagger$  et  $\delta\phi_i$ . Or ceci est possible car  $\mathbf{p}^2$  est hermitique. Ce qui donne :

$$\begin{aligned} \delta F(\phi_i^\dagger, \phi_i) &= \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i \delta\phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) \left[ \left( \frac{p_i^2}{2m} - \epsilon_i \right) + \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \frac{e^2 \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \phi_j(\mathbf{r}_j)}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} \right] \phi_i(\mathbf{r}_i) \\ &+ \sum_{i=1}^N \int d\mathbf{r}_i \delta\phi_i(\mathbf{r}_i) \left[ \left( \frac{p_i^2}{2m} - \epsilon_i \right) + \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \frac{e^2 \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \phi_j(\mathbf{r}_j)}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} \right] \phi_i^\dagger(\mathbf{r}_i) = 0 \end{aligned}$$

La condition (C.9) impose alors que  $[\hat{g}_i\phi_i] = [\hat{h}_i\phi_i^\dagger] = 0$ , ce qui permet d'obtenir N équations d'évolution monoélectroniques pour chaque fonction d'onde  $\phi_i(\mathbf{r}_i)$  appelées **équations de Hartree** :

$$\left( \frac{p_i^2}{2m} + \sum_{i \neq j} \int d\mathbf{r}_j \frac{e^2 \phi_j^\dagger(\mathbf{r}_j) \phi_j(\mathbf{r}_j)}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} \right) \phi_i(\mathbf{r}_i) = \epsilon_i \phi_i(\mathbf{r}_i). \quad (\text{C.16})$$

## Annexe D

# Polarisation de la lumière

Cette annexe présente en détails les calculs nécessaires pour obtenir les relations géométriques impliquant les paramètres d'une ellipse. Soit un champ électromagnétique décrit par un onde plane polarisée elliptiquement se propageant selon l'axe des  $z$ .

$$\begin{aligned}\mathbf{E}(z, t) &= (E_{0x}e^{i\phi_x}\mathbf{e}_x + E_{0y}e^{i\phi_y}\mathbf{e}_y)e^{i(kz-\omega t)} \\ &= (E_{0x}\mathbf{e}_xe^{-i\omega t} + E_{0y}\mathbf{e}_ye^{i(\phi-\omega t)})e^{i(kz+\phi_x)},\end{aligned}$$

où l'on note  $\phi = \phi_y - \phi_x$  le déphasage entre les composantes du champ électrique. Le champ se décompose dans la base cartésienne  $(O, x, y)$  :

$$\mathbf{E} = E_{0x}\cos(\omega t)\mathbf{e}_x + E_{0y}\cos(\omega t - \phi)\mathbf{e}_y \quad E_x = E_{0x}\cos(\omega t) \quad (\text{D.1})$$

$$E_y = E_{0y}\cos(\omega t - \phi). \quad (\text{D.2})$$

Pour obtenir l'équation de l'ellipse dans la base  $(Oxy)$ , on développe l'expression  $\cos(\omega t - \phi)$  à l'aide de la formule de trigonométrie suivante :

$$\cos(\omega t - \phi) = \cos(\omega t)\cos(\phi) + \sin(\omega t)\sin(\phi), \quad (\text{D.3})$$

que l'on transforme à l'aide des équations (D.1) et (D.2) :

$$\begin{aligned}(\text{D.3}) \Leftrightarrow \frac{E_y}{E_{0y}} &= \frac{E_x}{E_{0x}}\cos(\phi) + \left(1 - \left(\frac{E_x}{E_{0x}}\right)^2\right)^{1/2} \sin(\phi) \\ \Leftrightarrow \left(\frac{E_y}{E_{0y}} - \frac{E_x}{E_{0x}}\cos(\phi)\right)^2 &= \left(1 - \left(\frac{E_x}{E_{0x}}\right)^2\right) \sin^2(\phi) \\ \Leftrightarrow \left(\frac{E_y}{E_{0y}}\right)^2 + \left(\frac{E_x}{E_{0x}}\right)^2 \cos^2(\phi) - \frac{2E_yE_x}{E_{0y}E_{0x}}\cos(\phi) &= \sin^2(\phi) - \left(\frac{E_x}{E_{0x}}\right)^2 \sin^2(\phi).\end{aligned} \quad (\text{D.4})$$

La formule (D.4) conduit à l'équation de l'ellipse dans la base  $(Oxy)$  :

$$\left(\frac{E_y}{E_{0y}}\right)^2 + \left(\frac{E_x}{E_{0x}}\right)^2 - \frac{2E_yE_x}{E_{0y}E_{0x}}\cos(\phi) = \sin^2(\phi). \quad (\text{D.5})$$

On peut aussi introduire le repère propre de l'ellipse  $(Ox'y')$  qui fait un angle  $\theta$  avec  $(Oxy)$  et définir le grand axe  $a$  et le petit axe  $b$ . Dans la base  $(Ox'y')$  l'équation de l'ellipse s'écrit :

$$\left(\frac{E_{x'}}{a}\right)^2 + \left(\frac{E_{y'}}{b}\right)^2 = 1. \quad (\text{D.6})$$

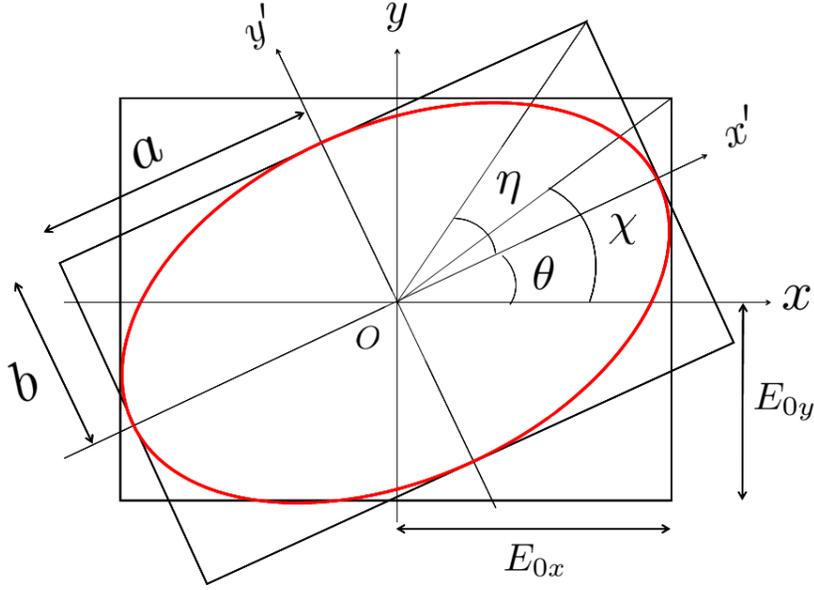


FIG. D.1 –

Les équations (D.5) et (D.6) permettent de relier entre elles les grandeurs  $E_{0x}$ ,  $E_{0y}$ ,  $a$ ,  $b$ ,  $\theta$ ,  $\eta$ ,  $\chi$ , l'intensité  $I = E_{0x}^2 + E_{0y}^2$  et la phase  $\phi$  sous la forme des cosinus et sinus de la phase  $\phi$  et des angles de rotation  $\theta$  et d'ellipticité  $\eta$ .

On écrit tout d'abord les composantes  $E_{x'}$  et  $E_{y'}$  dans la base  $Oxy$  :

$$\begin{cases} E_{x'} = E_x \cos(\theta) + E_y \sin(\theta) \\ E_{y'} = E_y \cos(\theta) - E_x \sin(\theta) \end{cases} \quad \begin{cases} E_{x'}^2 = E_x^2 \cos^2(\theta) + E_y^2 \sin^2(\theta) + 2E_x E_y \cos(\theta) \sin(\theta) \\ E_{y'}^2 = E_y^2 \cos^2(\theta) + E_x^2 \sin^2(\theta) - 2E_x E_y \cos(\theta) \sin(\theta) \end{cases} \quad (D.7)$$

On injecte les expressions (D.7) dans (D.6) pour obtenir :

$$\frac{E_x^2 \cos^2(\theta)}{a^2} + \frac{E_y^2 \sin^2(\theta)}{a^2} + \frac{2E_x E_y \cos(\theta) \sin(\theta)}{a^2} + \frac{E_y^2 \cos^2(\theta)}{b^2} + \frac{E_x^2 \sin^2(\theta)}{b^2} - \frac{2E_x E_y \cos(\theta) \sin(\theta)}{b^2} = 1. \quad (D.8)$$

En identifiant membre à membre les termes des équations (D.5) et (D.8) on obtient les trois relations suivante :

$$\frac{1}{E_{0x}^2} = \sin^2(\phi) \left( \frac{\cos^2(\theta)}{a^2} + \frac{\sin^2(\theta)}{b^2} \right) \quad (D.9)$$

$$\frac{1}{E_{0y}^2} = \sin^2(\phi) \left( \frac{\cos^2(\theta)}{b^2} + \frac{\sin^2(\theta)}{a^2} \right) \quad (D.10)$$

$$\frac{\cos(\phi)}{E_{0y} E_{0x}} = -\sin^2(\phi) \cos(\theta) \sin(\theta) \left( \frac{1}{a^2} - \frac{1}{b^2} \right). \quad (D.11)$$

On exprime tout d'abord la quantité  $\sin(\phi)$ . On somme (D.9) et (D.10) pour obtenir (D.12) :

$$(D.9) + (D.10) = \frac{1}{E_{0x}^2} + \frac{1}{E_{0y}^2} = \sin^2(\phi) \left( \frac{1}{a^2} + \frac{1}{b^2} \right). \quad (D.12)$$

On utilise la définition de l'intensité lumineuse  $I = E_{0x}^2 + E_{0y}^2 = a^2 + b^2$  pour exprimer  $\sin^2(\phi)$  et  $\sin(\phi)$  à partir de (D.12) :

$$\begin{aligned} \sin^2(\phi) &= \frac{(E_{0x}^2 + E_{0y}^2)}{E_{0y}^2 E_{0x}^2} \frac{a^2 b^2}{(a^2 + b^2)} = \frac{a^2 b^2}{E_{0y}^2 E_{0x}^2} \\ \sin(\phi) &= \pm \frac{ab}{E_{0y} E_{0x}}. \end{aligned} \quad (D.13)$$

### Paramètre d'ellipticité $\eta$

A partir de (D.13) et de la quantité  $\frac{I}{2} = \frac{E_{0x}^2 + E_{0y}^2}{2} = \frac{a^2 + b^2}{2}$ , on peut obtenir la relation importante (D.14) impliquant la quantité  $\sin(2\eta)$

$$\begin{aligned} E_{0y} E_{0x} \sin(\phi) = ab &\Leftrightarrow \frac{2E_{0y} E_{0x} \sin(\phi)}{E_{0x}^2 + E_{0y}^2} = \frac{2ab}{a^2 + b^2} \\ &\Leftrightarrow \frac{2E_{0y}}{E_{0x}} \frac{\sin(\phi)}{\left(1 + \frac{E_{0y}^2}{E_{0x}^2}\right)} = \frac{2b}{a} \frac{1}{\left(1 + \frac{b^2}{a^2}\right)} \\ &\Leftrightarrow \frac{2\tan(\chi)}{1 + \tan^2(\chi)} \sin(\phi) = \frac{2\tan(\eta)}{1 + \tan^2(\eta)} \\ &\Leftrightarrow \sin(2\chi) \sin(\phi) = \sin(2\eta), \end{aligned} \quad (D.14)$$

où on a utilisé les quantités  $\tan(\chi)$  et  $\tan(\eta)$  obtenues géométriquement par lecture de la figure D1 :

$$\tan(\chi) = \frac{E_{0y}}{E_{0x}} \quad \tan(\eta) = \frac{b}{a}.$$

On détermine ensuite la quantité  $\cos(2\eta)$  :

$$\begin{aligned} \cos(2\eta) &= (1 - \sin^2(2\eta))^{1/2} = (1 - \sin^2(2\chi) \sin^2(\phi))^{1/2} = (1 - \sin^2(2\chi) \sin^2(\phi))^{1/2} \\ &= \left( 1 - \left[ \frac{2\tan(\chi)}{1 + \tan^2(\chi)} \right]^2 \sin^2(\phi) \right)^{1/2} = \left( 1 - \left[ \frac{2\tan(\chi)}{1 + \tan^2(\chi)} \right]^2 \sin^2(\phi) \right)^{1/2} \\ &= \left( 1 - \frac{4E_{0y}^2 E_{0x}^2}{(E_{0y}^2 + E_{0x}^2)^2} \sin^2(\phi) \right)^{1/2} = \left( 1 - \frac{4E_{0y}^2 E_{0x}^2}{I^2} \sin^2(\phi) \right)^{1/2} \end{aligned} \quad (D.15)$$

### Paramètre de rotation $\theta$

On part de l'équation (D.11) que l'on transforme pour faire apparaître  $\sin(2\theta)$  :

$$\begin{aligned} (D.11) &\Leftrightarrow \frac{\cos(\phi)}{E_{0y} E_{0x}} = -\sin^2(\phi) \cos(\theta) \sin(\theta) \left( \frac{1}{a^2} - \frac{1}{b^2} \right) = \sin^2(\phi) \frac{\sin(2\theta)}{2} \frac{(a^2 - b^2)}{a^2 b^2} \\ &\Leftrightarrow \sin(2\theta) = \frac{2\cos(\phi)}{E_{0x} E_{0y}} \frac{a^2 b^2}{\sin^2(\phi) (a^2 - b^2)} = \frac{2\cos(\phi) E_{0x} E_{0y}}{(a^2 - b^2)}. \end{aligned} \quad (D.16)$$

On transforme la quantité  $a^2 - b^2$  à l'aide de (D.15) :

$$a^2 - b^2 = \frac{I(a^2 - b^2)}{(a^2 + b^2)} = I \frac{1 - \frac{b^2}{a^2}}{1 + \frac{b^2}{a^2}} = I \frac{1 - \tan^2(\eta)}{1 + \tan^2(\eta)} = I \cos(2\eta) = (I^2 - 4E_{0y}^2 E_{0x}^2 \sin^2(\phi))^{1/2},$$

ce qui permet d'écrire (D.16) selon :

$$\sin(2\theta) = \frac{2\cos(\phi)E_{0x}E_{0y}}{(I^2 - 4E_{0y}^2 E_{0x}^2 \sin^2(\phi))^{1/2}}. \quad (\text{D.17})$$

On peut ensuite calculer la quantité  $\cos(2\theta)$  :

$$\begin{aligned} \cos(2\theta) &= (1 - \sin^2(2\theta))^{1/2} = \left(1 - \frac{4\cos^2(\phi)E_{0x}^2 E_{0y}^2}{(I^2 - 4E_{0y}^2 E_{0x}^2 \sin^2(\phi))}\right)^{1/2} \\ &= \left(\frac{I^2 - 4E_{0y}^2 E_{0x}^2 \sin^2(\phi) - 4\cos^2(\phi)E_{0x}^2 E_{0y}^2}{(I^2 - 4E_{0y}^2 E_{0x}^2 \sin^2(\phi))}\right)^{1/2} = \left(\frac{(E_{0x}^2 + E_{0y}^2)^2 - 4E_{0y}^2 E_{0x}^2}{(I^2 - 4E_{0y}^2 E_{0x}^2 \sin^2(\phi))}\right)^{1/2} \\ &= \left(\frac{(E_{0x}^2 - E_{0y}^2)^2}{(I^2 - 4E_{0y}^2 E_{0x}^2 \sin^2(\phi))}\right)^{1/2} = \frac{E_{0x}^2 - E_{0y}^2}{(I^2 - 4E_{0y}^2 E_{0x}^2 \sin^2(\phi))^{1/2}}. \end{aligned} \quad (\text{D.18})$$

### Paramètre de phase $\phi$

On a déjà montré que :

$$\sin(\phi) = \frac{ab}{E_{0y}E_{0x}}.$$

A partir de (D.16) on peut obtenir :

$$\cos(\phi) = \frac{\sin(2\theta)(a^2 - b^2)}{2E_{0y}E_{0x}}.$$

Ces deux dernières quantités permettent de déterminer  $\tan(\phi)$  :

$$\tan(\phi) = \frac{2ab}{(a^2 - b^2)\sin(2\theta)} = \frac{2b}{a} \frac{1}{(1 - \frac{b^2}{a^2})} \frac{1}{\sin(2\theta)} = \frac{2\tan(\eta)}{1 - \tan^2(\eta)} \frac{1}{\sin(2\theta)} = \frac{\tan(2\eta)}{\sin(2\theta)},$$

qui conduit à la relation importante suivante :

$$\tan(2\eta) = \sin(2\theta)\tan(\phi). \quad (\text{D.19})$$

### Paramètres de Stockes

On présente pour finir, les paramètres de Stockes, qui sont souvent utilisés en polarimétrie :

$$\begin{cases} U &= I \cos(2\eta) \sin(2\theta) = 2E_{0x}E_{0y} \cos(\phi) \\ Q &= I \cos(2\eta) \cos(2\theta) = E_{0x}^2 - E_{0y}^2 \\ V &= I \sin(2\eta) = 2E_{0x}E_{0y} \cos(\phi) \end{cases} \quad I^2 = U^2 + Q^2 + V^2. \quad (\text{D.20})$$

## Annexe E

# Equations de Maxwell dans le formalisme de Dirac

« Dieu n'existe toujours pas, mais il semble y avoir plusieurs prophètes. J'espère que ça ne posera pas de problèmes. »

Naïveté humaniste.

Cette annexe a pour but de rappeler les analogies qui peuvent exister dans la formulation mathématique de l'équation de Dirac et des équations de Maxwell. L'équation de Dirac pour un bispineur  $\Psi$  est une équation comportant des opérateurs du premier ordre :

$$(c\boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{p} + mc^2\beta) \Psi = i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi \quad \Psi = \begin{pmatrix} u \\ v \end{pmatrix}.$$

Dans ce formalisme, le spineur électronique  $u$  et le spineur positronique  $v$  sont couplés. La projection de l'équation de Dirac donne :

$$\begin{aligned} c(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p})v + mc^2u &= i\hbar \frac{\partial u}{\partial t} \\ c(\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{p})u - mc^2v &= i\hbar \frac{\partial v}{\partial t}. \end{aligned} \quad (\text{E.1})$$

On peut découpler ces deux équations, et obtenir au premier ordre en  $1/m$ , une équation usuelle de Schrödinger pour chaque spineur  $u$  et  $v$  impliquant un opérateur vectoriel du second ordre en  $1/m$  :

$$\begin{aligned} -\frac{\hbar}{2m}\Delta u + mc^2u &= i\hbar \frac{\partial u}{\partial t} \\ -\frac{\hbar}{2m}\Delta v - mc^2v &= i\hbar \frac{\partial v}{\partial t}. \end{aligned} \quad (\text{E.2})$$

Les quatre équations de Maxwell sont composées d'opérateurs du premier ordre couplant les vecteurs champ électrique et champ magnétique :

$$\begin{aligned} \nabla \cdot \mathbf{E} &= \frac{\rho}{\epsilon_0} & \nabla \cdot \mathbf{B} &= 0 \\ \nabla \wedge \mathbf{E} &= -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} & \nabla \wedge \mathbf{B} &= \mu_0 \mathbf{j} + \mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t}. \end{aligned}$$

On peut découpler ces équations et obtenir les équations de propagation de D'Alembert impliquant des opérateurs du second ordre :

$$\begin{aligned}\Delta \mathbf{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} &= 0 \\ \Delta \mathbf{B} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{B}}{\partial t^2} &= 0.\end{aligned}$$

Dans l'ouvrage *Relativistic quantum mechanics. - Wave equations* [5], est présenté un exercice (Exercice 2.1 page 105 [5]), dans lequel les équations de Maxwell sont écrites dans un formalisme de Dirac. Elles sont écrites avec des matrices  $4 \times 4$  anticommutantes et permettent d'aboutir à une équation d'onde de propagation des champs électromagnétiques. L'équation proposée est la suivante,

$$i \left( \alpha^0 \frac{\partial}{c \partial t} \Psi + \alpha^1 \frac{\partial}{\partial x} \Psi + \alpha^2 \frac{\partial}{\partial y} \Psi + \alpha^3 \frac{\partial}{\partial z} \Psi \right) = -\frac{4\pi}{c} \Phi. \quad (\text{E.3})$$

et se condense selon :

$$\left( \sum_j \alpha^j \frac{\partial}{\partial x^j} \right) \Psi = \frac{i4\pi}{c} \Phi. \quad (\text{E.4})$$

Le champ électromagnétique est décrit par le quadri-vecteur  $\Psi$  et les sources par le quadri-vecteur  $\Phi$  :

$$\Psi = \begin{pmatrix} \Psi_0 \\ \Psi_1 \\ \Psi_2 \\ \Psi_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ H_1 - E_1 \\ H_2 - E_2 \\ H_3 - E_3 \end{pmatrix} \quad \Phi = \begin{pmatrix} \Phi_0 \\ \Phi_1 \\ \Phi_2 \\ \Phi_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} c\rho_0 \\ j_1 \\ j_2 \\ j_3 \end{pmatrix},$$

et les matrices  $\alpha^j$  telles que  $\{\alpha^j, \alpha^i\} = 2\delta_{i,j}$  sont :

$$\begin{aligned}\alpha^0 &= \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} & \alpha^1 &= \begin{bmatrix} 0 & -1 & 0 & 0 \\ -1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -i \\ 0 & 0 & i & 0 \end{bmatrix} \\ \alpha^2 &= \begin{bmatrix} 0 & 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & i \\ -1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -i & 0 & 0 \end{bmatrix} & \alpha^3 &= \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & -1 \\ 0 & 0 & -i & 0 \\ 0 & i & 0 & 0 \\ -1 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}.\end{aligned}$$

En appliquant l'opérateur  $(\sum_i \alpha^i \frac{\partial}{\partial x^i})$  de part et d'autre de l'équation (E.4), on obtient l'équation (E.5) :

$$\begin{aligned}\left( \sum_i \alpha^i \frac{\partial}{\partial x^i} \right) \left( \sum_j \alpha^j \frac{\partial}{\partial x^j} \right) \Psi &= \left( \sum_i \alpha^i \frac{\partial}{\partial x^i} \right) \frac{i4\pi}{c} \Phi \\ \left( (\alpha^0)^2 \frac{\partial^2}{c^2 \partial t^2} - \sum_i (\alpha^i)^2 \frac{\partial^2}{\partial x^{i2}} \right) \Psi &= \frac{i4\pi}{c} \sum_i \alpha^i \frac{\partial}{\partial x^i} \Phi \\ \left( \nabla^2 - \frac{\partial^2}{c^2 \partial t^2} \right) \Psi &= \frac{i4\pi}{c} \sum_i \alpha^i \frac{\partial}{\partial x^i} \Phi\end{aligned} \quad (\text{E.5})$$

Si il n'y a pas de source  $\Phi = 0$  dans (E.5) et on retrouve une équation d'onde de type d'Alembert :

$$\left( \nabla^2 - \frac{\partial^2}{c^2 \partial t^2} \right) \Psi = 0. \quad (\text{E.6})$$

L'exercice conclut sur cette application. On propose d'investir ce formalisme pour retrouver réellement l'expression des équations de Maxwell. On réalise auparavant un **changement de notations**. Les indices  $i = 0, 1, 2, 3$  sont remplacés par les indices de coordonnées spatio-temporelles  $ct, x, y, z$ . Le champ  $H$  est remplacé par le champ  $cB$  pour permettre l'homogénéité avec le champ électrique  $E$ . On adopte les unités du système international dans lequel  $\mu_0\epsilon_0c^2 = 1$ .

### Equations de Maxwell dans le vide

Avec les nouvelles notations et pour  $\Phi = 0$ , la projection de (E.3) sur les axes du repère cartésien donne les quatre équations suivantes :

$$-c\frac{\partial B_x}{\partial x} + i\frac{\partial E_x}{\partial x} - c\frac{\partial B_y}{\partial y} + i\frac{\partial E_y}{\partial y} - c\frac{\partial B_z}{\partial z} + i\frac{\partial E_z}{\partial z} = 0 \quad (\text{E.7})$$

$$\frac{\partial B_x}{\partial t} - i\frac{\partial E_x}{c\partial t} + ic\left(\frac{\partial B_z}{\partial y} - \frac{\partial B_y}{\partial z}\right) + \left(\frac{\partial E_z}{\partial y} - \frac{\partial E_y}{\partial z}\right) = 0 \quad (\text{E.8})$$

$$\frac{\partial B_y}{\partial t} - i\frac{\partial E_y}{c\partial t} + ic\left(\frac{\partial B_x}{\partial z} - \frac{\partial B_z}{\partial x}\right) + \left(\frac{\partial E_x}{\partial z} - \frac{\partial E_z}{\partial x}\right) = 0 \quad (\text{E.9})$$

$$\frac{\partial B_z}{\partial t} - i\frac{\partial E_z}{c\partial t} + ic\left(\frac{\partial B_y}{\partial x} - \frac{\partial B_x}{\partial y}\right) + \left(\frac{\partial E_y}{\partial x} - \frac{\partial E_x}{\partial y}\right) = 0. \quad (\text{E.10})$$

Ces quatre équations représentent bien une combinaison linéaire des équations de Maxwell. La première ligne donne :

$$i\nabla \cdot \mathbf{E} - c\nabla \mathbf{B} = 0.$$

L'addition des trois dernières lignes fait apparaître :

$$\left(\nabla \wedge \mathbf{E} + \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}\right) + ic\left(\nabla \wedge \mathbf{B} - \frac{\partial \mathbf{E}}{c^2\partial t}\right) = 0.$$

En introduisant le vecteur  $\Psi$  :

$$\Psi = c\mathbf{B} - i\mathbf{E}, \quad (\text{E.11})$$

les quatre équations de Maxwell dans le vide se mettent sous la forme suivante qui ne comprend plus que deux équations :

$$\nabla \cdot \Psi = 0 \quad (\text{E.12})$$

$$\frac{1}{c}\frac{\partial \Psi}{\partial t} + i\nabla \wedge \Psi = 0. \quad (\text{E.13})$$

### Applications

On peut retrouver l'équation d'onde de D'Alembert en appliquant l'opérateur  $\left(\frac{\partial}{c\partial t} - i\nabla \wedge\right)$  à l'équation (E.13) :

$$\left(\frac{\partial}{c\partial t} - i\nabla \wedge\right)\left(\frac{\partial}{c\partial t} + i\nabla \wedge\right)\Psi = \left(\frac{\partial^2}{c^2\partial t^2} + \frac{i}{c}\frac{\partial}{\partial t}\nabla \wedge - \frac{i}{c}\nabla \wedge\frac{\partial}{\partial t} + \nabla \wedge \nabla\right)\Psi \quad (\text{E.14})$$

$$= \left(\frac{\partial^2}{c^2\partial t^2}\Psi + \nabla(\nabla \cdot \Psi) - \nabla^2\Psi\right) = 0. \quad (\text{E.15})$$

Et puisque d'après (E.12),  $\nabla \cdot \Psi = 0$  on peut transformer l'équation précédente pour obtenir l'équation d'onde :

$$\nabla^2\Psi - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2}\Psi = 0.$$

**Etude avec les sources**

On reprend l'étude en tenant compte des sources de charges et de courants. La projection de l'équation (E.3) donne les deux équations suivantes :

$$i\nabla \cdot \mathbf{E} - c\nabla \cdot \mathbf{B} = i\frac{4\pi}{c}\rho c$$

$$\left(\nabla \wedge \mathbf{E} + \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}\right) + ic\left(\nabla \wedge \mathbf{B} - \frac{\partial \mathbf{E}}{c^2 \partial t}\right) = i\frac{4\pi}{c}\mathbf{j}.$$

En se replaçant dans le système international, on a les équivalences  $4\pi\rho \equiv \frac{\rho}{\epsilon_0}$  et  $\frac{4\pi}{c}\mathbf{j} = c\mu_0\mathbf{j}$ . On obtient les équations de Maxwell avec les termes sources :

$$\nabla \cdot \Psi = \frac{\rho}{i\epsilon_0}$$

$$\frac{1}{c}\frac{\partial \Psi}{\partial t} + i\nabla \wedge \Psi = ic\mu_0\mathbf{j}.$$

**Equation de continuité**

On peut former l'équation de continuité à partir des deux dernières équations :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho}{\partial t} &= i\epsilon_0 \frac{\partial}{\partial t} (\nabla \cdot \Psi) = i\epsilon_0 \frac{\partial}{\partial t} (\nabla \cdot \Psi) \\ &= i\epsilon_0 (i\mu_0 c^2 \nabla \cdot \mathbf{j} - ic \nabla \cdot (\nabla \wedge \Psi)) \\ &= -\nabla \cdot \mathbf{j}. \end{aligned} \quad (\text{E.16})$$

**Conclusion**

On retiendra que les quatre équations de Maxwell :

$$\begin{aligned} \nabla \cdot \mathbf{E} &= \frac{\rho}{\epsilon_0} & \nabla \cdot \mathbf{B} &= 0 \\ \nabla \wedge \mathbf{E} &= -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} & \nabla \wedge \mathbf{B} &= \mu_0 \mathbf{j} + \mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t}, \end{aligned}$$

sont compatibles avec un formalisme de Dirac et invitent à former le vecteur complexe  $\Psi = c\mathbf{B} - i\mathbf{E}$  pour décrire le champ électromagnétique. Elle se réduisent alors à deux équations :

$$\nabla \cdot \Psi = \frac{\rho}{i\epsilon_0} \quad (\text{E.17})$$

$$\left(\frac{1}{c}\frac{\partial}{\partial t} + i\nabla \wedge\right) \Psi = ic\mu_0\mathbf{j}. \quad (\text{E.18})$$

# Conclusion

L'objet principal de ce travail était d'étudier l'aspect relativiste de l'interaction rayonnement-matière induit par des impulsions lumineuses ultra-brèves et intenses dans les phases condensées. Cette étude s'inscrit dans le contexte de la désaimantation ultra-rapide induite par des impulsions laser femto-seconde, et plus précisément dans la thématique nouvelle de la désaimantation cohérente, où une interaction relativiste de type spin-orbite impliquant le champ électromagnétique de l'impulsion laser, est envisagée pour expliquer les effets cohérents mesurés dans [8]. Ces expériences, destinées à être reproduites dans le régime atto-seconde, nous ont conduit à avoir un regard vigilant sur la nature ultra-rapide de la source excitatrice.

Concernant les interactions entre les degrés de liberté du spin et un champ électromagnétique dépendant du temps, l'étude exploratoire n'a pas été vaine. En diagonalisant le hamiltonien de Dirac au cinquième ordre en  $1/m$  selon la méthode de TFW développée dans [12], nous avons trouvé de nombreux couplages impliquant le spin et les dérivées temporelles du champ électromagnétique. En particulier, nous avons mis en évidence que le couplage direct entre le spin et le champ électromagnétique dépendant du temps pouvait s'écrire selon une systématique mathématique bien précise. L'effet Zeeman et l'interaction spin-orbite apparaissent comme étant les deux premiers termes d'un développement en série entière impliquant des corrections relativistes d'ordres supérieurs, fonctions des dérivées temporelles du champ magnétique et du champ électrique. Les amplitudes de ces corrections s'expriment comme une compétition entre la pulsation du champ externe dépendant du temps et la pulsation intrinsèque à l'électron : la pulsation Compton ( $\omega_C \approx 10^{21} \text{ s}^{-1}$ ) ; elles augmentent à mesure que l'on se déplace vers les régimes atto-seconde et sub-atto-seconde. Le fait de développer le hamiltonien à des ordre plus élevés que nécessaire permet de mettre en évidence la genèse mathématique des termes d'interaction rayonnement-matière. A ce sujet, les éléments que nous avons extraits peuvent être mis à profit pour tenter d'écrire le reste du hamiltonien sous la forme d'un développement en série entière.

L'étude réalisée sur le système à deux électrons a également apporté son lot de surprises. L'idée était de regarder la modification du hamiltonien de Breit-Pauli au second ordre en  $1/m$ , en présence d'un champ externe dépendant du temps. Nous avons montré qu'il suffisait de remplacer l'impulsion d'un électron par l'impulsion généralisée dans l'expression des opérateurs du hamiltonien de Breit-Pauli, et que le hamiltonien électronique d'interaction avec le champ externe était celui du hamiltonien de FW au second ordre en  $1/m$  pour chaque électron. Les résultats de l'étude à un électron, nous ont poussé à développer le hamiltonien de Breit-Pauli au troisième ordre en  $1/m$ , pour y regarder l'impact du champ externe. Le développement analytique a montré qu'à partir du troisième ordre en  $1/m$ , le champ électrique externe interagit explicitement avec les spins électroniques et l'opérateur de Coulomb par le biais d'opérateurs de type interaction spin-orbite, interaction spin-autre-orbite et interaction spin-spin. Un de ces opérateurs est particulièrement surprenant. Il montre que le champ électrique externe et le champ électrique coulombien s'associent pour produire un champ magnétique effectif qui interagit avec les spins. La pertinence d'un tel effet reste bien entendu à discuter et mérite

d'être étudiée plus sérieusement. Néanmoins, les résultats obtenus dans l'étude à un électron, invitent à développer le hamiltonien de Breit-Pauli aux quatrième et cinquième ordre en  $1/m$ . Il est plus que tentant de vérifier si l'impact du champ externe dépendant du temps (et de ses dérivées temporelles), s'organise aux ordres supérieurs selon une systématique mathématique similaire au cas monoélectronique.

Un autre objectif était de mettre en place un outil théorique qui puisse incorporer l'interaction spin-orbite du deuxième ordre en  $1/m$  pour un grand nombre de particules, capables de représenter un échantillon solide. A ce jour, les mécanismes d'interaction rayonnement-matière conduisant à la perte d'aimantation d'un corps ferromagnétique ne sont pas déterminés. L'interaction spin-orbite est souvent évoquée pour y jouer un rôle important, et il est nécessaire de produire des modèles pouvant justifier ou réfuter cette hypothèse. Nous avons donc essayé de développer un modèle de champ moyen auto-cohérent avec les équations de Maxwell, incorporant l'ensemble des corrections relativistes du second ordre en  $1/m$ . Nous nous sommes rendus compte, qu'en écrivant les équations de Maxwell dans la jauge de Coulomb et dans l'approximation quasistatique, la nature vectorielle des éléments d'interaction rayonnement-matière obtenus par la théorie de champ moyen, ressemblaient fortement à celle rencontrée dans l'étude du problème à deux électrons en interaction. Nous avons donc décidé de comparer les résultats de notre approche avec les termes obtenus par une méthode variationnelle utilisée pour dériver les équations de Hartree.

Dans le formalisme quantique et relativiste nous avons montré que les deux approches sont équivalentes. Les termes d'interaction rayonnement-matière obtenus par l'approche auto-cohérente sont identiques aux termes de champ moyen dérivés à partir du hamiltonien de Breit. En revanche, dans le cadre de la mécanique quantique non-relativiste, nous n'avons pas pu prouver l'équivalence exacte entre les deux méthodes, bien que les résultats soient très similaires. Les opérateurs d'interaction de l'approche auto-cohérente sont légèrement différents des termes de champ moyen dérivés à partir du hamiltonien de Breit-Pauli. Cependant, les différences observées ne sont que d'ordre formelle. Une prochaine étape possible dans ce modèle serait d'inclure les termes d'échanges et de corrélations, afin d'approcher une description plus juste du ferromagnétisme.

Il est important de souligner, que l'étude du cas quantique non-relativiste, a ouvert des questions sur l'expression mathématique de la fonction d'onde électronique qu'il faudrait utiliser dans la limite non-relativiste. Pour obtenir une théorie auto-cohérente au second ordre en  $1/m$ , il nous a fallu écrire les densités de charge et de courant quantiques au second ordre en  $1/m$  de façon cohérentes avec le hamiltonien de FW du second ordre en  $1/m$ . Les expressions que nous avons obtenues vérifient l'équation de conservation de la charge, mais nous avons remarqué, que des approches analytiques différentes de celle que nous avons utilisée, ne conduisaient pas aux mêmes expressions des sources quantiques du second ordre en  $1/m$ . Ce résultat constitue une problématique encore ouverte dont l'origine pourrait provenir de la transformation unitaire de la fonction d'onde de Dirac.

Une autre partie de ce travail a été consacrée à la compréhension des expériences de magnéto-optique cohérentes présentées dans [8] sur des échantillons ferromagnétiques de Ni et de CoPt<sub>3</sub>. Pour l'expérience Faraday non-linéaire, nous avons choisi de considérer le problème en se basant sur les phénomènes de bases de la magnéto-optique : les effets Kerr et Faraday, et d'aborder le signal magnéto-optique comme une différence de chemin optique parcouru par les modes circulaires (+) et (-). De notre point de vue, l'expérience Faraday non-linéaire réalisée dans [8] constitue un relevé expérimental d'une expérience de magnéto-optique non-linéaire et doit être étudiée en terme de

différence de chemin optique. En revanche, concernant les signaux magnéto-optiques cohérents résolus en temps, notre approche a été plus indirecte, et nous avons travaillé sur l'observable aimantation, en considérant l'hypothèse plausible d'une désaimantation cohérente d'un matériau ferromagnétique induite par une impulsion laser ultra-brève. Les deux études ont porté sur le nickel, plus simple à décrire que le  $\text{CoPt}_3$ .

A propos de l'expérience Faraday non-linéaire, les évolutions des paramètres magnéto-optiques en fonction de l'énergie absorbée, suggeraient fortement d'écrire la réponse magnéto-optique sous une forme incluant l'aspect non-linéaire. Nous avons donc essayé d'étendre les théories de magnéto-optiques linéaires existantes aux régimes non-linéaires. Nous sommes parvenus à écrire les indices optiques circulaires d'un milieu non-linéaire et anisotrope sous une forme relativement simple, exprimée à l'aide des fonctions de réponse isotrope et anisotrope du troisième ordre et d'une dépendance non-linéaire du champ électrique. Pour tester la validité de cette formule et confronter ses prédictions théoriques avec les résultats expérimentaux, il nous a fallu modéliser les fonctions de réponse optiques du nickel. Pour se faire une première idée, nous avons choisi de les décrire à l'aide de modèles classiques simples. Malgré l'aspect rudimentaire de notre modélisation, notamment dans la description de l'aimantation et du phénomène d'absorption, les résultats sont plutôt encourageants. La formule des indices optiques non-linéaires restitue le profil non-linéaire des résultats expérimentaux. Nous proposons de confirmer sa validité sur d'autres expériences de magnéto-optique non-linéaire. La formule ainsi que le modèle utilisé présentent aussi l'avantage de pouvoir être améliorés et complétés. Une prochaine étape serait de l'utiliser pour décrire des expériences résolues en temps.

Au sujet de la désaimantation cohérente induite par des impulsions laser ultra-brèves et intenses, nous avons essayé de définir un axe d'étude qui puisse la différencier de la désaimantation incohérente. Les pistes sont multiples au vu de la complexité de l'ordre ferromagnétique. Dans l'hypothèse d'une interaction relativiste entre les spins et les champs électromagnétiques du laser, nous avons essayé d'incorporer de façon cohérente les corrections relativistes du second ordre en  $1/m$  dans des modèles simples décrivant le magnétisme. Nos résultats conduisent bien à une diminution de l'aimantation mais ne correspondent pas aux conditions expérimentales de [8]. Nous tenons à préciser, que ce travail amorcé n'est pas en mesure de vérifier ou de réfuter l'hypothèse du couplage relativiste cohérent entre les spins et le champ électromagnétique. Cette thématique doit être explorée de façon plus approfondie. Il nous paraît également très important de tenir compte de l'interaction d'échange dans cette approche, car c'est elle qui gouverne l'interaction ferromagnétique.



# Bibliographie

- [1] P. A. M. Dirac, *The Principles of Quantum Mechanics*, Fourth Edition, Oxford University Press (1982).
- [2] P. A. M. Dirac, *Les principes de la mécanique quantique*, traduction de la quatrième édition, Presses polytechniques et universitaires romandes (2009).
- [3] P. Strange, *Relativistic Quantum Mechanics*, Cambridge University Press, (2005).
- [4] C. Itzykson, J. -B. Zuber, *Quantum Field Theory*, McGraw-Hill (1985).
- [5] W. Greiner, *Relativistic quantum mechanics. - Wave equations*, Springer, (2000).
- [6] W. Greiner, J. Reinhardt *Quantum Electrodynamics*, Springer, (2003)
- [7] M. Klasen, *Mécanique Quantique Relativiste, théories de jauge*, Dunod (2009)
- [8] J. -Y. Bigot et al., *Nature Physics* **5**, 515 (2009).
- [9] L. Foldy and S. Wouthuysen, *Phys. Rev.* **78**, 29 (1950).
- [10] G. Breit, *Phys. Rev.* **34**, No. 4 (1929)
- [11] H. A. Bethe et E. E. Salpeter. *Quantum Mechanics of One and Two Electron Atoms*, Plenum/Rosetta Editions (1977)
- [12] F. Reuse, *Electrodynamique et Optique Quantiques*, Presses polytechniques et universitaires romandes (2007).
- [13] J. D. Jackson *Classical Electrodynamics*, .
- [14] V. B. Berestetskii, L. P. Pitaevskii, E.M. Lifshitz, *Quantum Electrodynamics*, Second Edition : Volume 4, Butterworth-Heinemann (1982).
- [15] K. M. Case, *Phys. Rev.* **95**, 1323 (1954).
- [16] M. Reiher and A. Wolf, *Relativistic Quantum Chemistry*, Wiley-VCH (2009).
- [17] K.G. Dyall and K. Faegri Jr, *Introduction to Relativistic Quantum Chemistry*, Oxford University Press (2007).
- [18] P. Gosselin, A. Bérard, and H. Mohrbach, *Eur. Phys. J. B* **58**, 137 (2007).
- [19] L. Landau, E. Lifchitz, *Physique Théorique 4 Electrodynamique quantique*, seconde édition (1989).
- [20] L. Landau, E. Lifchitz, *Physique Théorique 2 Théorie du champ*, .
- [21] L. Landau, E. Lifchitz, *Classical Theory of Field*, Quatrième édition, Pergamon (1975), Edition corrigée (1983).
- [22] L. Landau, E. Lifchitz, *Physique Théorique 3 Mécanique Quantique*, Editions Mir, seconde édition (1967).
- [23] V. N. Golubenkov and Y. A. Smorodinskii, *Zh. Eksp. Teor. Fiz* **31**, 330(1956) [*Sov. Phys. JETP* **4**, 42 (1957)] .
- [24] X. Jaen, J. Llosa and A. Molina , *Phys. Rev. D* **34**, 2302 (1986) .
- [25] T. Damour and G. Schäfer, *Phys. Rev. D* **37**, Number 4 (1988)

- [26] K. Y. Bliokh, Europhys. Lett. **72**, 7 (2005).
- [27] A. J. Silenko, Phys. Rev. A **77**, 012116 (2008).
- [28] M. H. Johnson and B. A. Lippmann, Phys. Rev. **76**, 828 (1949).
- [29] J. Roman, L. Roso and L. Plaja, J. Phys. B **36**, 2253 (2003).
- [30] J. P. Costella and B. H. J. Mc Kellar, Am.J.Phys. **63**, 1119 (1995).
- [31] A. Luican, G. Li and E. Y. Andrei, Phys. Rev. B **83**, 041405R (2011).
- [32] M.D Styles and al *The Spin-Other-Orbit Interaction and Magnetocrystalline Anisotropy* (2001).
- [33] C. Boeglin, J.-Y. Bigot and al, Nature Physics **465**, (2010).
- [34] J. -Y. Bigot et al., Phys. Rev.Let **76**, 4250 (1996).
- [35] J. -Y. Bigot et al., Phys. Rev. B **58**, 12134 (1998).
- [36] J. -Y. Bigot et al., C. R. Acad.Sci, Ser IV : Phys., Astrophys **2**, 1483 (2001).
- [37] J. -Y. Bigot et al., Phys. Rev. Lett **93**, 077401 (2004).
- [38] J. -Y. Bigot et al., Chem. Phys **318**, 137 (2005).
- [39] J. Holfeld et al., Phys. Rev.Let **78**, 4861 (1997).
- [40] A. Scholl et al, Phys. Rev.Let **79**, 5146 (1997).
- [41] J. Gudde et al, Phys. Rev. B **59**, R6608 (1999).
- [42] G. Ju et al, Phys. Rev. Let **82**, 3705 (1999).
- [43] G. Ju et al, Phys. Rev. B **58**, R11857 (1998).
- [44] B. Koopmans et al., Phys. Rev. Lett **85**, 844 (2000).
- [45] G. Ju et al, Phys. Rev. Let **93**, 197403 (1999).
- [46] A. V. Kimmel et al, Nature (London) **429**, 850 (1999).
- [47] M. Van Kampen, B. Koopmans et al., Phys. Rev. Lett **88**, 227201 (2002).
- [48] R. J. Hicken Philos. Trans. R. Soc. London. Ser. A **361**, 2827 (2003).
- [49] J. -U Thiele et al, Apply. Phys. Let **93**, 197403 (1999).
- [50] T. Ogazawara, Phys. Rev. Lett **94**, 087202 (2005).
- [51] A. Kirilyuk, A. V. Kimmel and T. Rasing *Ultrafast optical manipulation of magnetic order*, Reviews of Modern Physics, Vol 82, Jul-Sept 2010 (2010).
- [52] H. Vonesch, *Magnéto-optique ultra-rapide cohérente*, Thèse de Doctorat, Université de Strasbourg (2011).
- [53] Yu. P. Svirko and N. I. Zheludev, *Polarization of Light in Nonlinear Optics*, Wiley (1998).
- [54] S. Huard, *Polarisation de la lumière*, Masson (1994).
- [55] J. P. Perez *Optique : Fondements et applications*, Masson.
- [56] J. P. Perez *Electromagnétisme : Fondements et applications*, Masson.
- [57] W. Voigt, *Magneto- und Electro-Optik*, Teubner, Leipzig (1908).
- [58] H. R. Hulme, Proc. Roy. Soc (London) **A135**, 237 (1932).
- [59] Born et Jordan *Elementare Quantenmechanik* (1930).
- [60] C. Kittel, Phys. Rev. Lett **83**, 208 (1951).
- [61] P. N. Argyres, Phys. Rev. **97**, 334 (1955).
- [62] G. C. Fletcher, Proc. Phys. Soc. (London) **A65**, 192 (1952).
- [63] H. Brooks, Phys. Rev. **58**, 909 (1940).
- [64] H. Brooks, Phys. Rev. **49**, 537,931 (1936).

- [65] H. Brooks, Phys. Rev. **52**, 198 (1937).
- [66] H. S. Bennett and E. A. Stern, Phys. Rev. **137**, (1965).
- [67] C. Chappert and al Phys. Rev. B **53**, 9214 (1996).
- [68] H. Le Gall, J. Phys. Colloques, **32**, C1-590, (1971).
- [69] H. Ebert, *Reports on Progress in Physics*, **59(12)**, 1665, (1996).
- [70] H. Eschrig and al Phys. Rev. B, **52**, 3561 (1995).
- [71] K. H. Bennemann *Nonlinear Optics in Metals*, Oxford Press Univerity (1995).
- [72] A. Lagendijk et al, Phys. Rev. B **51**, (17) 11433 (1995).
- [73] C. Kittel Phys. Rev. B *Solid State in Physics*(19).
- [74] C. Zener , Phys. Rev. **88**, (2) (1951).
- [75] E. D.Palik, *Handbook of Optical Constants of Solids*, Academic Press (1998).
- [76] E. Maurat, *Etude théorique de la dynamique de charge et de spin de structures électroniques confinées*, Thèse de Doctorat, Université de Strasbourg (2009).
- [77] R. Jasiak, G. Manfredi and P.-A. Hervieux, Phys. Rev. B **81**, 241401 (2010).
- [78] A. Dixit, *Ultrafast Coherent Laser-Spin Interactions in Nano-scale Object*, Master 2 Report Thesis, Université de Strasbourg (2012).
- [79] F. Yan, L. Yang, B. Li, Phys. Lett. A **251**, 289 (1998).
- [80] F. Yan, L. Yang, B. Li, Phys. Lett. A **259**, 207 (1999).
- [81] C. Cohen-Tanoudji, B. Diu *Mécanique Quantique, Tome II* .
- [82] E. Burzo , Lecture *Models in Magnetism* gave in *The European School on Magnetism* in 2011 at Targoviste, Roumanie, [magnetism.eu/esm/2011/slides/burzo-slides.pdf](http://magnetism.eu/esm/2011/slides/burzo-slides.pdf).
- [83] C-Y. You and S-C . Shin, J. Appl. Phys **84** (1998).
- [84] Y. J. Yang and M. R. Scheinfein, J. Appl. Phys **74**, 6810 (1993).
- [85] J. Zak and al J. Appl. Phys **68**, 4203 (1990).
- [86] E. du Tremolet de Lachaisserie, *Magnétisme I-Fondements* Collection Grenoble Sciences.
- [87] Y. Perlov and al, J. Phys. Condensed Matter, **8**, 5769 (1990).
- [88] T. B. Krause, A. Apte, P. J. Morrison, Physics of plasmas, **14**, 102112 (2007).
- [89] J. D. Jackson, Am. J. Phys **70**, 917 (2002).
- [90] M. Nowakowski, Am. J. Phys, **67**, 916 (1999).
- [91] R. W. Boyd, *Non linear Optics*, Third edition, Academic Press (2008).
- [92] F. Sanchez *Optique non-linéaire*, Ellipses.