

MEMOIRE DE MASTER

FILIÈRE : MATHÉMATIQUES FONDAMENTALES

THÈME

SCHÉMAS MONOTONES DISCRÉTISÉS EN TEMPS POUR L'ÉQUATION DE
SCHRÖDINGER

Présenté par :

Kenneth ASSOGBA
kennethassogba@gmail.com

Sous la direction de :

Prof. Julien SALOMON
UNIVERSITÉ PARIS-DAUPHINE

S

Année Universitaire : 2018-2019

Résumé & Abstract

Résumé

Les problèmes de contrôle optimal dans les systèmes quantiques suscitent un vif intérêt, aussi bien pour les questions fondamentales que pour les applications existantes et futures. Un problème important est le développement de méthodes de construction de contrôles pour les systèmes quantiques. Une des méthodes couramment utilisée est la méthode de Krotov initialement proposée dans un cadre plus général dans les articles de V.F. Krotov et I.N. Feldman (1978 [1], 1983 [2]). Cette méthode a été utilisée pour développer une nouvelle approche permettant de déterminer des contrôles optimaux pour les systèmes quantiques dans [3] et dans de nombreux autres travaux de recherche : [4], [5] et [6] notamment. Leur mise en œuvre numérique repose sur des discrétisations liées à des développements limités. Cette approche entraîne cependant parfois des instabilités numériques. Nous présentons ici plusieurs méthodes de discrétisation temporelle qui permettent de résoudre ce problème en conservant au niveau discret la monotonie des schémas.

Mots-clés

contrôle quantique, schémas monotones convergents, méthode de Krotov

Abstract

Mathematical problems of optimal control in quantum systems attract high interest in connection with fundamental questions and existing and prospective applications. An important problem is the development of methods for constructing controls for quantum systems. One of the commonly used methods is the Krotov method initially proposed beyond quantum control in the articles by V.F. Krotov and I.N. Feldman (1978 [1], 1983 [2]). The method was used to develop a novel approach for finding optimal controls for quantum systems in [3], and in many works of various scientists : [4], [5] et [6] especially. However, the properties of the discrete version of these procedures have not been yet tackled with. We present here a stable time and space discretization which preserves the monotonic properties of the monotonic algorithms.

Key words

quantum control, monotonically convergent algorithms, Krotov method,

Notations

Ω	Espace des configurations
\mathcal{H}	Espace de Hilbert correspondant a un systeme quantique. On prends generalement $\mathcal{H} = \mathbb{C}^n$ ou $L^2(\Omega, \mathbb{C}^n)$ (a verifier)
\mathcal{H}^*	Dual de \mathcal{H}
$\ \cdot\ $	norme associée à \mathcal{H}
$\langle \cdot, \cdot \rangle$	produit hermitien associé à \mathcal{H} $\langle \psi, \phi \rangle = \sum_{k=1}^n \psi_k^* \phi_k$ en dimension finie $\langle \psi, \phi \rangle = \int_{\Omega} \psi^*(x) \phi(x) dx$ en dimension infinie on note indifféremment $\langle \psi, \phi \rangle = \langle \psi \phi \rangle = \langle \psi \phi \rangle$
$ \phi\rangle$	notation ket de Dirac dans ce memoire on note indifféremment $\phi = \phi\rangle \in \mathcal{H}$
$\langle \psi $	notation bra de Dirac dans ce memoire on note indifféremment $\psi = \langle \psi \in \mathcal{H}^*$
$L^2(\Omega)$	L'espace des fonctions de carré intégrable sur Ω
$H^n(\Omega)$	L'espace des fonctions de $L^2(\Omega)$ dont les dérivées partielles jusqu'à l'ordre n appartiennent à $L^2(\Omega)$
$ \cdot $	Valeur absolue
$H_u(z)$	Matrice hessienne de la fonction u au point z
(\cdot, \cdot)	Produit scalaire de \mathbb{R}^d
∇u	Gradient de la fonction u
A^T	Transposée de la matrice A
\Re	Partie réelle
\Im	Partie imaginaire

Table des matières

Résumé & Abstract	i
Notations	iii
Introduction	1
1 Mécanique quantique et contrôle quantique	4
1.1 La mécanique quantique en trois postulats	4
1.1.1 Premier postulat de la mécanique quantique	4
1.1.2 Observables et deuxième postulat	5
1.1.3 Equation de Schrödinger et troisième postulat	6
1.2 Contrôle quantique	7
1.2.1 Exemple de modèle bilinéaire (BLM)	7
1.2.2 Cas d'un champ laser	8
1.3 Discrétisation temporelle	8
1.3.1 Méthode du splitting d'opérateur	8
1.3.2 Schéma de Crank-Nicholson	10
2 Schémas monotones en chimie quantique	11
2.1 Introduction	11
2.2 Fonctionnelles de coût	11
2.3 Schémas monotones	13
3 Chap3	16
3.1 Sec 3.1	16
Bibliographie	17

Introduction

Origines de la mécanique quantique

A la fin du XIXe siècle, les diverses branches de la physique s'intégraient dans un édifice cohérent, basé sur l'étude de deux types d'objets distincts, la matière et le rayonnement :

- La matière est faite de corpuscules parfaitement localisables dont le mouvement peut être décrit par la mécanique de Newton. Les grandeurs physiques associées à ces corpuscules s'expriment en fonction des composantes de la position et de l'impulsion qui sont les variables dynamiques fondamentales.
- Le rayonnement est gouverné par les lois de l'électromagnétisme de Maxwell. Ses variables dynamiques sont les composantes en chaque point de l'espace des champs électrique et magnétique.

Le succès de la physique était à cette époque impressionnant et tous les phénomènes connus trouvaient leur explication dans le cadre de ce programme classique.

A l'aube du XXe siècle et avec l'essor des progrès technologiques, les physiciens se trouvèrent tout à coup confrontés à des phénomènes nouveaux pour lesquels les prévisions de la théorie classique sont en désaccord flagrant avec l'expérience. Il fallait donc jeter les bases d'une nouvelle théorie susceptible de pallier les insuffisances de la conception classique. (une transition serait appréciable)

Contrôle optimal et optimisation numérique

L'objet de notre étude est un système quantique, modélisé entre deux mesures par l'équation de Schrödinger :

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(x, t) = H\psi(x, t) \quad (1)$$

En vue de modéliser les interactions onde-matière à l'échelle atomique, nous introduisons un contrôle, généré par un dipôle électrostatique de moment dipolaire $\mu(x)$, émettant un champ (électrique) laser, d'amplitude $\varepsilon(t)$ dépendant du temps.

La dynamique du système est désormais donnée par :

$$\begin{cases} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(x, t) &= H\psi(x, t) - \mu(x)\varepsilon(t)\psi(x, t) \\ \psi(x, t=0) &= \psi_0(x) \end{cases} \quad (2)$$

H étant un opérateur hermitien, défini par :

$$H = H_0 + V = -\frac{1}{2m}\Delta + V$$

En posant :

$$A(\psi(t), \varepsilon(t)) = -i(H - \mu(x)\varepsilon(t))\psi(x, t) \quad (3)$$

On se ramène au problème de Cauchy

$$\begin{cases} \dot{\psi}(t) &= A(\psi(t), \varepsilon(t)) \\ \psi(t=0) &= \psi_0 \end{cases} \quad (4)$$

Nous nous posons maintenant deux questions.

Problème de contrôlabilité

Un système est dit contrôlable si on peut le ramener à tout état prédéfini au moyen d'un contrôle. Plus précisément on pose la définition suivante (indiquer les ensembles)

Définition 1. On dit que le système (4) est contrôlable (ou commandable) si pour tous les états ψ_0, ψ_{cible} , il existe un temps fini T et un contrôle admissible $\varepsilon(\cdot)$ tel que $\psi_{cible} = \psi(T, \psi_0, \varepsilon(\cdot))$.

Si la condition précédente est remplie, existe-t-il un contrôle joignant ψ_0 à ψ_{cible} , et qui de plus minimise une certaine fonctionnelle $J(\varepsilon)$?

Contrôle optimal

Existe-t-il un contrôle pour atteindre un état cible (upgrade). Nous voulons construire un contrôle d'amplitude "raisonnable" afin d'ammener le système d'un état initial ψ_0 à un état cible $O\psi(T)$. O étant l'observable décrivant l'état cible.

On considère ainsi une fonctionnelle J

$$J(\varepsilon) = \langle \psi(T) | O | \psi(T) \rangle - \alpha \int_0^T \varepsilon^2(t) dt \quad \alpha \in \mathbb{R}_+ \quad (5)$$

et on se pose le problème : Trouver ε tel que ε résouds

$$\max_{\varepsilon \in L^2(0, T)} J(\varepsilon)$$

Au maximum de la fonctionnelle $J(\varepsilon)$, les équations de Euler-Lagrange sont satisfaites. Le Lagrangien du système est donné par :

$$\mathcal{L}(\psi, \varepsilon, \chi) = J(\varepsilon) - 2\Re \left\{ \int_0^T \langle \chi(t) | \partial_t + i(H_0 + V - \mu(x)\varepsilon(t)) | \psi(t) \rangle dt \right\} \quad (6)$$

Schémas monotones

Une strategie efficace de résolution de ces équations est donnée par une classe d'algorithmes relevant du contrôle quantique, les schémas monotones. Ils ont été introduits en 1992 par David Tannor, Vladimir Kazakov et V. Orlov, [3], sur la base des travaux de Krotov (precision). Une amélioration a ensuite été proposée par Wusheng Zhu et Herschel Rabitz [4] en 1998. Une généralisation est donnée par Yvon Maday et Gabriel Turinici en 2003 [5].

Question : Comment construire une discrétisation temporelle puis spatiale de ces algorithmes qui préserve la propriété de monotonie ?

(Plan)

MÉCANIQUE QUANTIQUE ET CONTRÔLE QUANTIQUE

1.1 La mécanique quantique en trois postulats

1.1.1 Premier postulat de la mécanique quantique

Fonction d'onde

En mécanique quantique, l'état d'un système donné, est donné par son vecteur d'état $|\psi(t)\rangle$. L'espace des états dépend du système considéré. Par exemple, dans le cas le plus simple où le système n'a pas de spin, les états quantiques sont des fonctions ψ :

$$\begin{aligned}\psi : \quad \mathbb{R}^3 &\rightarrow \mathbb{C} \\ (x, y, z) &\mapsto \psi(x, y, z)\end{aligned}$$

telles que l'intégrale $\int_{\mathbb{R}^3} |\psi(\mathbf{r})|^2 d\mathbf{r}$ converge. Dans ce cas, ψ est appelée la fonction d'onde du système.

Cas d'une particule dans l'espace a une dimension

La probabilité pour que la particule soit dans l'intervalle $[a, b]$ est donnée par l'aire de la courbe située entre $x = a$ et $x = b$ (figure si possible)

$$\int_a^b dP(x) = \int_a^b |\psi(x, t)|^2 dx \quad (1.1)$$

Il est impossible de connaître avec précision la position de la particule a un instant t . On ne peut que connaître la probabilité $dP(x)$ pour qu'elle soit entre x et $x + dx$, soit :

$$dP(x) = |\psi(x, t)|^2 dx = \psi(x, t) \overline{\psi(x, t)} dx \quad (1.2)$$

La particule doit être quelque part sur l'axe $X'OX$, par conséquent :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} |\psi(x, t)|^2 dx = 1 \quad (1.3)$$

pour tout t . ψ est donc de carre sommable. La densite de probabilite est donnee par

$$\frac{dP(x, t)}{dx} = |\psi(x, t)|^2 = \rho(x, t) \quad (1.4)$$

Cas d'une particule dans l'espace à trois dimensions

On a

$$\int dP(\vec{r}, t) = \iiint_{\text{espace}} |\psi(x, t)|^2 d^3r = 1 \quad (1.5)$$

Où d^3r représente l'élément de volume donnée par :

$$d^3r = dx dy dz = r^2 \sin\theta dr d\theta d\varphi$$

Cas de N particules

L'espace le mieux adapté à la description des systèmes en physique quantique est un espace Ω , nommé espace des configurations qui représente l'ensemble de toutes les configurations possibles du système. Par exemple, dans le cas d'un système à N particules isolées et sans contraintes, l'espace des configurations est $\Omega = \mathbb{R}^{3N}$ et $\psi(x, t) \in L^2(\Omega, \mathbb{C})$.

Postulat 1. *A tout système quantique correspond un espace de Hilbert complexe \mathcal{H} , tel que l'ensemble des états accessibles au système soit en bijection avec la sphère unité de \mathcal{H} .*

1.1.2 Observables et deuxième postulat

Une observable est l'équivalent en mécanique quantique d'une grandeur physique en mécanique classique, comme la position, la quantité de mouvement, l'énergie, etc. Une observable est formalisée mathématiquement par un opérateur hermitien (endomorphisme autoadjoint) sur \mathcal{H} (chaque état quantique est représenté par un vecteur de \mathcal{H}).

Exemple 1.1. *Exemples d'observables*

1. la position : X
2. l'énergie potentielle : V
3. la quantité de mouvement : $P = -i\hbar \nabla$
4. l'énergie cinétique : $H_0 = \frac{P \cdot P}{2m} = -\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2$
5. l'énergie totale, appelé hamiltonien : $H = H_0 + V$

Postulat 2. *A toute grandeur physique représentée par l'observable A correspond un opérateur A auto-adjoint sur \mathcal{H} , vérifiant la propriété suivante : le résultat de la mesure d'une grandeur physique A ne peut être qu'un élément du spectre de A .*

Les valeurs propres sont les valeurs pouvant résulter d'une mesure idéale de cette propriété, les vecteurs propres étant l'état quantique du système immédiatement après la mesure et résultant de cette mesure. Ce postulat peut donc s'écrire :

$$A|\alpha_n\rangle = a_n|\alpha_n\rangle$$

où A , $|\alpha_n\rangle$ et a_n désignent, respectivement, l'observable, le vecteur propre et la valeur propre correspondante.

Les états propres de tout observable A forment une base orthonormée dans l'espace de

Hilbert \mathcal{H} . Cela signifie que tout vecteur $|\psi(t)\rangle$ peut se décomposer de manière unique sur la base de ces vecteurs propres $|\phi_i\rangle$:

$$|\psi\rangle = c_1|\phi_1\rangle + c_2|\phi_2\rangle + \dots + c_n|\phi_n\rangle + \dots$$

La moyenne des mesures de \mathcal{A} est quant à elle égale à $\langle\psi|A|\psi\rangle$ où la notation $\langle\cdot|A|\cdot\rangle$ est définie par :

$$\langle\psi|A|\chi\rangle = \int_{\Omega} \bar{\psi} A \chi \quad (1.6)$$

Exemple 1.2. La position moyenne sur l'axe des abscisses :

$$\langle X \rangle = \int_{-\infty}^{\infty} x |\psi(x, t)|^2 dx$$

1.1.3 Equation de Schrödinger et troisième postulat

L'équation de Schrödinger, proposée par le physicien autrichien Erwin Schrödinger en 1926, est une équation fondamentale en mécanique quantique. Elle décrit l'évolution dans le temps d'une particule massive non relativiste, et remplit ainsi le même rôle que la relation fondamentale de la dynamique en mécanique classique $\frac{dp}{dt} = F$.

Postulat 3. Entre deux mesures, l'évolution de l'état est régie par l'équation de Schrödinger

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(x, t) = H\psi(x, t) \quad (1.7)$$

Considerons le cas d'une particule libre ($V = 0$) et menons notre étude sur \mathbb{R}^m ($m \geq 1$) nous étudions alors l'équation

$$u'(t) = Au(t) \quad (1.8)$$

où A est un opérateur sur $E = L^2(\mathbb{R}^m)$ défini par

$$Au = ik\Delta u = ik(\partial_1^2 u + \dots + \partial_m^2 u)$$

k une constante réelle. Le domaine de A est l'ensemble des $u \in L^2(\mathbb{R}^m)$ tel que Δu (au sens des distributions) appartient à L^2 .

Définition 1.1. On dit que le problème de Cauchy pour l'équation (1.8) est bien posé si les deux hypothèses suivantes sont satisfaites :

- (a) **Existence et unicité de solutions** : Il existe un sous espace dense D de E tel que, pour tout $u_0 \in D$, il existe une unique solution $u(\cdot)$ de (1.8) avec $u(0) = u_0$
- (b) **La solution dépend de façon continue des données** Il existe une fonction non décroissante, non négative $C(t)$ tel que

$$\|u(t)\| \leq C(t)\|u(0)\|$$

En appliquant la transformee de Fourier a (1.8), nous obtenons

$$\begin{aligned}\mathcal{F}[Au](\xi) &= \mathcal{F}[ik\Delta u](\xi) \\ &= ik\mathcal{F}[\Delta u](\xi) \\ &= -ik|\xi|^2\mathcal{F}[u](\xi) \\ \mathcal{F}[Au](\xi) &= -ik|\xi|^2\tilde{u}(\xi)\end{aligned}$$

Alors si $u_0 \in D(A)$ nous obtenons une solution :

$$u(t) = \mathcal{F}^{-1}(\exp(-ik|\xi|^2 t)\mathcal{F}[u_0](\xi)) \quad (1.9)$$

Puisque $D(A)$ est dense dans E , on deduis que (1.8) admet une unique solution sur E . Ensuite, observons que si $u \in D(A)$, alors

$$\begin{aligned}(Au, u) &= (\mathcal{F}[Au], \mathcal{F}[u]) \\ &= ik \int |\xi|^2 |\tilde{u}|^2\end{aligned}$$

Ainsi, $\Re(Au, u) = 0$

Par consequent, si $u(\cdot)$ est une solution de (1.8), nous avons :

$$\begin{aligned}\partial_t ||u(t)||^2 &= 2\Re(u'(t), u(t)) \\ &= 2(Au(t), u(t)) \\ &= 0\end{aligned}$$

Ainsi, $||u(t)||$ est constante :

$$||u(t)|| = ||u(0)|| \quad \forall t \in \mathbb{R} \quad (1.10)$$

En conclusion, le probleme de Cauchy pour (1.8) est bien pose pour tout t .

En outre, [10] generalise ce resultat sur $E = L^p(\mathbb{R}^m)$ avec $1 \leq p < m$.

1.2 Controle quantique

On rappelle que l'état $\psi(t)$ d'un systeme quantique evolue conformement a l'équation de Schrödinger :

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(x, t) = H\psi(x, t), \quad \psi(t = 0) = \psi_0 \quad (1.11)$$

ou H est un endomorphisme auto-adjoint sur \mathcal{H} appelé Hamiltonien interne du systeme. \hbar est la constante de Planck. Dans la suite, nous travaillons en unités atomiques, c'est-à-dire $\hbar = 1$ et l'état initial a une norme unitaire, $||\psi_0||^2 \equiv \langle \psi_0 | \psi_0 \rangle = 1$.

1.2.1 Exemple de modele bilineaire (BLM)

Pour simplifier, nous considerons un systeme quantique de dimension finie. C'est une approximation appropriée dans de nombreuses situations pratiques. Pour un systeme quantique de dimension N , \mathcal{H} est un espace de Hilbert complexe de dimension N .

Les valeurs propres $(\phi_i)_{1 \leq i \leq N}$ de H forment une base orthogonale de \mathcal{H} .

Dans de nombreuses situations, le controle du systeme peut-etre realise par un ensemble de fonctions de controle $\varepsilon_k(t) \in \mathbb{R}$ couplees au systeme via une famille d'operateurs hermitiens independants du temps $\{H_k, k = 1, 2, \dots\}$. L'Hamiltonien total $H + \sum_k \varepsilon_k(t)H_k$ determine alors la nouvelle dynamique du systeme.

$$i \frac{\partial}{\partial t} \psi(x, t) = (H + \sum_k \varepsilon_k(t) H_k) \psi(x, t) \quad (1.12)$$

Le but typique d'un probleme de conrole quantique defini sur le systeme (1.12) est de trouver en temps fini $T > 0$ un ensemble de controles admissibles $u_k(t) \in \mathbb{R}$ qui conduit le systeme d'un etat initial ψ_0 a un etat prescrit ψ_{cible} .

1.2.2 Cas d'un champs laser

En vue de modéliser les interactions onde-matière a l'échelle atomique, nous introduisons un contrôle, généré par un dipole électrostatique de moment dipolaire $\mu(x)$, émetant un champs (électrique) laser, d'amplitude $\varepsilon(t)$ dépendant du temps. La dynamique du systeme est désormais donnée par :

$$\begin{cases} i \frac{\partial}{\partial t} \psi(x, t) &= H \psi(x, t) - \mu(x) \varepsilon(t) \psi(x, t) \\ \psi(x, t = 0) &= \psi_0(x) \end{cases} \quad (1.13)$$

1.3 Discrétisation temporelle

Choisissons deux paramètres de discrétisation temporelle N et ΔT tel que $N\Delta T = T$ et notons ψ_j l'approximation de $\psi(j\Delta T)$, $0 \leq j \leq N$.

1.3.1 Méthode du splitting d'opérateur

Considerons l'équation différentielle ordinaire scalaire

$$\dot{x} = (a + b)x, \quad x(0) = x_0 \quad (1.14)$$

ou a et b sont des scalaires. On connaît la solution exacte de cette equation :

$$\begin{aligned} x(t) &= \exp((a + b)t)x_0 = \exp(at)\exp(bt)x_0 \quad (\text{methode 1}) \\ &= \exp(bt)\exp(at)x_0 \quad (\text{methode 2}) \end{aligned}$$

Nous pouvons ainsi separer l'évolution selon (1.14) en deux temps :

$$(L1) \begin{cases} \dot{y} = by, & y(0) = x_0 \\ \dot{x} = ax, & x(0) = y(t) \end{cases}$$

$$(L2) \begin{cases} \dot{y} = ay, & y(0) = x_0 \\ \dot{x} = bx, & x(0) = y(t) \end{cases}$$

Pour le systeme (L1), on a clairement

$$\begin{aligned} x(t) &= \exp(at)x_0 \\ &= \exp(at)y(t) \\ &= \exp(at)\exp(bt)y(0) \\ &= \exp(at)\exp(bt)x_0 \end{aligned}$$

Pour (L2), le calcul se fait de la meme maniere et donne le meme resultat.

On appelle **splitting de Lie** ou methode a pas fractionnaire les deux methodes (L1) et (L2). Pour une equation scalaire, ces deux methodes sont identiques et reviennent au meme que de traiter l'equation en une seule fois. Pour exprimer le splitting dans notre exemple, nous avons ete obliges d'introduire une variable intermediaire y . Ceci s'avererait a l'usage peu pratique pour des contextes plus compliques. Nous introduisons donc les semi-groupes.

Définition 1.2. Soit X un espace de Banach. Une famille $(T(t))_{t \geq 0}$ d'operateurs lineaires bornes de X dans X est un semi-groupe (fortement) continu d'opérateurs linéaires bornés si

- (i) $T(0) = id_X$;
- (ii) $T(t+s) = T(t)T(s)$, $\forall t, s \geq 0$;
- (iii) $\forall x \in X$, $\mathbb{R} \ni t \mapsto T(t)x \in X$ est continue en 0.

Remarque 1.1. Un semi-groupe d'operateurs lineaires bornes $(T(t))_{t \geq 0}$, est uniformement continue si

$$\lim_{t \rightarrow 0} \|T(t) - I\| = 0$$

Un semi-groupe (fortement) continu d'opérateurs linéaires bornés sur X sera appele semi-groupe de classe C_0 ou simplement C_0 semi-groupe.

Si seulement (i) et (ii) sont satisfaits, on dit que la famille $(T(t))_{t \geq 0}$ est un semi-groupe.

Définition 1.3. L'operateur lineaire A defini par

$$D(A) = \left\{ x \in X : \lim_{t \rightarrow 0^+} \frac{T(t)x - x}{t} \text{ existe} \right\} \quad (1.15)$$

et

$$Ax = \lim_{t \rightarrow 0^+} \frac{T(t)x - x}{t} \quad \text{pour } x \in D(A) \quad (1.16)$$

est le generateur infinitesimal du semi-groupe $(T(t))_{t \geq 0}$; $D(A)$ est le domaine de A

Splittings de Strang

L'application qui a x_0 associe $x(t)$ par le flot de l'EDO est le semi-groupe que nous noterons $S(t)$

$$x(t) = S(t)x_0 = \exp((a+b)t)x_0 \quad (1.17)$$

On note $A(t)$ et $B(t)$ les semi-groupes associes aux deux parties de l'equation, a savoir

$$A(t)x_0 = \exp(at)x_0, \quad B(t)x_0 = \exp(bt)x_0$$

Les deux splittings de Lie (L1) et (L2) consistent donc à écrire

$$(L1) \ x(t) = A(t)B(t)x_0, \quad (L2) \ x(t) = B(t)A(t)x_0$$

On définit sans effort deux nouveaux types de splitting : les **splittings de Strang** [8]

$$(S1) \ x(t) = A\left(\frac{t}{2}\right)B(t)A\left(\frac{t}{2}\right)x_0, \quad (S2) \ x(t) = B\left(\frac{t}{2}\right)A(t)B\left(\frac{t}{2}\right)x_0$$

Les méthodes de Lie et de Strang sont respectivement d'ordre 1 et 2.

Splitting de Strang pour l'équation de Schrödinger

Afin de présenter le schéma de splitting, on considère un problème d'évolution général. Soit A et B , deux opérateurs auto-adjoints, tels que : $D(A) \subset \mathcal{H}$, $D(B) \subset \mathcal{H}$ et $A + B$ est un opérateur auto-adjoint sur $D(A) \cap D(B)$. On note ici $D(A)$ et $D(B)$ les domaines respectifs des opérateurs A et B . Considérons le problème d'évolution

$$\begin{cases} i\partial_t \psi(x, t) &= A\psi(x, t) + B\psi(x, t), \quad x \in \Omega, t > 0 \\ \psi(x, t = 0) &= \psi_0(x) \in \mathcal{H} \end{cases} \quad (1.18)$$

et notons $\psi(x, t) = e^{-i(A+B)t}\psi_0(x)$ sa solution pour $t > 0$, et $x \in \Omega$. Le schéma de splitting consiste à approcher la solution ψ du problème d'évolution via une approximation de l'opérateur $e^{-i(A+B)t}$ à travers les opérateurs e^{-iA} et e^{-iB} . Ceci permet alors d'avoir à résoudre successivement deux équations plus simples.

Ici, $A = H_0$ et $B = V(x) - \mu(x)\varepsilon(t)$ est la partie potentielle. On obtient l'approximation

$$\psi(x, t + \Delta T) \approx e^{-iH_0 \frac{\Delta T}{2}} e^{-i(V(x) - \mu\varepsilon)\Delta T} e^{-iH_0 \frac{\Delta T}{2}} \psi(x, t) \quad (1.19)$$

Propriétés 1.1. Cette méthode conserve la norme L^2 de la fonction d'onde ψ au cours du temps.

Preuve. Les opérateurs exponentiels étant anti-hermitiens, leurs exponentielles sont en effet unitaires.

Cette propriété importante (1.10) est donc conservée après discrétisation. D'autres méthodes de résolution approchée peuvent être envisagées : schémas d'Euler, Runge-Kutta... Le problème posé par ces schémas est qu'ils ne conservent pas la norme de la solution en général.

1.3.2 Schéma de Cranck-Nicholson

Une exception existe avec le schéma implicite de Cranck-Nicholson défini dans notre cas par :

$$i \frac{\psi_{j+1} - \psi_j}{\Delta T} = (H_0 - \mu\varepsilon_j) \frac{\psi_{j+1} + \psi_j}{2} \quad (1.20)$$

En tant que schéma implicite, son inconvénient majeur est d'être coûteux.

SCHÉMAS MONOTONES EN CHIMIE QUANTIQUE

2.1 Introduction

Considérons un système quantique décrit par une fonction d'onde $\psi(x, t)$ soumis à un champ électrique $\varepsilon(t)$ et dont l'état initial $\psi(x, 0) = \psi_0(x)$ est supposé connu. Comme stipulé au paragraphe 1.2.5, l'évolution d'un tel système est régie par l'équation :

$$\begin{cases} i\frac{\partial}{\partial t}\psi(x, t) = H\psi(x, t) - \mu(x)\varepsilon(t)\psi(x, t) \\ \psi(x, t = 0) = \psi_0(x) \end{cases} \quad (2.1)$$

Le moment dipolaire μ est supposé connu et indépendant du temps.

2.2 Fonctionnelles de coût

Soit $\alpha : [0, T] \rightarrow \mathbb{R}^+$ une fonction bornée, O un opérateur symétrique borné, T un réel positif, ε une fonction de $L^2([0, T], \mathbb{R})$, $\psi : \Omega[0, T] \rightarrow \mathbb{C}$ une fonction d'onde dépendant du temps et $\psi_{cible} : \Omega \rightarrow \mathbb{C}$ une fonction d'onde fixée.

Les fonctionnelles de coût rencontrées dans cette thèse peuvent se mettre sous l'une des deux formes suivantes :

$$J_1(\varepsilon) = \langle \psi(T) | O | \psi(T) \rangle - \int_0^T \alpha(t) \varepsilon^2(t) dt \quad (2.2)$$

$$J_2(\varepsilon) = 2\Re \langle \psi_{cible} | \psi(T) \rangle - \int_0^T \alpha(t) \varepsilon^2(t) dt \quad (2.3)$$

L'optimisation de J_1 permet de réaliser un compromis entre la recherche d'une grande valeur de l'observable et une norme L_2 du champ ε raisonnable. Bien que ne relevant pas du formalisme attaché aux observables, la fonctionnelle J_2 est parfois utilisée par les chimistes. Le terme ψ_{cible} représente une fonction d'onde cible. Le maximum du terme $2\Re \langle \psi_{cible} | \psi(T) \rangle$ est en effet atteint pour $\psi(T) = \psi_{cible}$ puisque $\|\psi_{cible}\| = 1$ et que $2\Re \langle \psi_{cible} | \psi(T) \rangle = -\|\psi_{cible} - \psi(T)\|^2 + 2$.

Le bénéfice apporté par la dépendance en temps de α est qu'elle permet de spécifier des contraintes au cours du temps. Il est par exemple souhaitable dans certaines applications que le champ soit nul aux voisinages des bords de l'intervalle de contrôle.

Cette contrainte pourra être prise en compte en choisissant α suffisamment grand sur les bords de $[0, T]$. Nous présentons quelques intérêts pratiques d'une telle propriété au chapitre 3. L'ensemble U des contrôles admissibles, sur lequel est réalisé l'optimisation, est a priori $L^2([0, T], \mathbb{R})$. Comme nous le verrons aux chapitres 2 et 5, les algorithmes développés dans cette thèse conduisent en fait plus particulièrement à des contrôles bornés sur $[0, T]$.

Remarque 2.1. Les opérateurs, tels que O , associés à des observables sont toujours supposés bornés sur $L^2([0, T], \mathbb{R})$ dans cette thèse. Sans perte de généralité, il est de plus possible de les considérer comme définis positifs. Par exemple, en notant $\|O\|_*$ la norme de l'opérateur O , l'opérateur $\tilde{O} = O + 2\|O\|_* Id$ est défini positif. Le remplacement de O par \tilde{O} n'entraîne qu'un décalage de $2\|O\|_*$ de la valeur de la fonctionnelle, puisque une fonction d'onde est toujours de norme égale à 1 dans $L^2(\Omega)$. Les maxima de J ne sont donc pas affectés par cette modification sur O .

D'un point de vue algébrique, le multiplicateur de Lagrange est le même que celui introduit au paragraphe 1.5.2, à un facteur $\frac{1}{2}$ près. Ce choix est effectué pour des raisons pratiques puisque des simplifications sont alors possibles grâce à la présence de termes quadratiques dans les fonctionnelles J_1 et J_2 définies par les équations (1.14) et (1.15). Les équations d'Euler-Lagrange sont alors données pour J_1 par :

$$\begin{cases} i\frac{\partial}{\partial t}\psi(x, t) = H - \varepsilon(t)\mu(x)\psi(x, t) \\ \psi(x, t = 0) = \psi_0(x) \end{cases} \quad (2.4)$$

$$\begin{cases} i\frac{\partial}{\partial t}\chi(x, t) = H - \varepsilon(t)\mu(x)\chi(x, t) \\ \chi(x, t = T) = O\psi(x, T) \end{cases} \quad (2.5)$$

$$\alpha(t)\varepsilon(t) = -\Im\langle\chi(t)|\mu|\psi(t)\rangle \quad (2.6)$$

et pour J_2 par :

$$\begin{cases} i\frac{\partial}{\partial t}\psi(x, t) = H - \varepsilon(t)\mu(x)\psi(x, t) \\ \psi(x, t = 0) = \psi_0(x) \end{cases} \quad (2.7)$$

$$\begin{cases} i\frac{\partial}{\partial t}\chi(x, t) = H - \varepsilon(t)\mu(x)\chi(x, t) \\ \chi(x, t = T) = \psi_{cible}(x) \end{cases} \quad (2.8)$$

$$\alpha(t)\varepsilon(t) = -\Im\langle\chi(t)|\mu|\psi(t)\rangle \quad (2.9)$$

Notons de plus que dans ces deux fonctionnelles, seule la valeur au temps T des fonctions d'onde est prise en compte. Les résultats exposés dans ce mémoire peuvent s'appliquer cependant dans certains cas à des fonctionnelles comportant des termes de la forme :

$$\int_0^T \langle\psi(t)|O'(t)|\psi(t)\rangle + \lambda\Re\langle\psi_{ref}(t)|\psi(t)\rangle dt \quad (2.10)$$

où $O'(t)$ et $\psi_{ref}(t)$ représentent respectivement une observable et une fonction d'onde dépendant du temps. Signalons enfin que l'existence de maxima de J_1 et de J_2 et de fonctionnelles plus générales a été montrée dans [30] et [31].

2.3 Schémas monotones

Supposons ε_k connu et voyons comment déterminer $\tilde{\varepsilon}^k$ et ε^{k+1} , les champs permettant le calcul des propagations respectives de χ^k et ψ^{k+1} . Les formules des accroissements (1.11), (1.12) donnent dans les cas des fonctionnelles J_1 et J_2 :

$$\begin{aligned} J_1(\varepsilon^{k+1} - J_1(\varepsilon^k)) &= \int_0^T (\tilde{\varepsilon}^k(t) - \varepsilon^{k+1}(t))(2\Im\langle\chi^k(t)|\mu|\psi^{k+1}(t)\rangle + \alpha(t)(\tilde{\varepsilon}^k(t) + \varepsilon^{k+1}(t)))dt \\ &\quad + \int_0^T (\varepsilon^k(t) - \tilde{\varepsilon}^k(t))(2\Im\langle\chi^k(t)|\mu|\psi^k(t)\rangle + \alpha(t)(\varepsilon^k(t) + \tilde{\varepsilon}^k(t)))dt \\ &\quad + \langle\delta\psi^{k+1,k}(T)|O|\delta\psi^{k+1,k}(T)\rangle dt \end{aligned} \quad (2.11)$$

$$\begin{aligned} J_2(\varepsilon^{k+1} - J_2(\varepsilon^k)) &= \int_0^T (\tilde{\varepsilon}^k(t) - \varepsilon^{k+1}(t))(2\Im\langle\chi^k(t)|\mu|\psi^{k+1}(t)\rangle + \alpha(t)(\tilde{\varepsilon}^k(t) + \varepsilon^{k+1}(t)))dt \\ &\quad + \int_0^T (\varepsilon^k(t) - \tilde{\varepsilon}^k(t))(2\Im\langle\chi^k(t)|\mu|\psi^k(t)\rangle + \alpha(t)(\varepsilon^k(t) + \tilde{\varepsilon}^k(t)))dt \end{aligned} \quad (2.12)$$

Notons I_k la partie intégrale commune à ces deux formules.

$$\begin{aligned} I_k &= \int_0^T (\tilde{\varepsilon}^k(t) - \varepsilon^{k+1}(t))(2\Im\langle\chi^k(t)|\mu|\psi^{k+1}(t)\rangle + \alpha(t)(\tilde{\varepsilon}^k(t) + \varepsilon^{k+1}(t)))dt \\ &\quad + \int_0^T (\varepsilon^k(t) - \tilde{\varepsilon}^k(t))(2\Im\langle\chi^k(t)|\mu|\psi^k(t)\rangle + \alpha(t)(\varepsilon^k(t) + \tilde{\varepsilon}^k(t)))dt \end{aligned} \quad (2.13)$$

Des conditions suffisantes pour assurer la monotonie de la suite $(J(\varepsilon^k))_{k \in \mathbb{N}}$ sont alors données par le critère (C) suivant :

$$\forall t \in [0, T], \begin{cases} (\varepsilon^k(t) - \tilde{\varepsilon}^k(t))(2\Im\langle\chi^k(t)|\mu|\psi^k(t)\rangle + \alpha(t)(\varepsilon^k(t) + \tilde{\varepsilon}^k(t))) & \geq 0 \\ (\tilde{\varepsilon}^k(t) - \varepsilon^{k+1}(t))(2\Im\langle\chi^k(t)|\mu|\psi^{k+1}(t)\rangle + \alpha(t)(\tilde{\varepsilon}^k(t) + \varepsilon^{k+1}(t))) & \geq 0 \end{cases} \quad (C)$$

Nous passons en revue dans les sections suivantes différentes approches permettant d'assurer la vérification du critère (C).

Monotonie imposée par une condition algébrique

Remarquons que I_k peut être écrit sous la forme suivante :

$$I_k = \int_0^T \alpha(t) \left[\left(\varepsilon^{k+1}(t) + \frac{1}{\alpha(t)} \Im\langle\chi^k(t)|\mu|\psi^{k+1}(t)\rangle \right)^2 - \left(\tilde{\varepsilon}^k(t) + \frac{1}{\alpha(t)} \Im\langle\chi^k(t)|\mu|\psi^{k+1}(t)\rangle \right)^2 \right] dt \quad (2.14)$$

$$+ \int_0^T \alpha(t) \left[\left(\tilde{\varepsilon}^k(t) + \frac{1}{\alpha(t)} \Im\langle\chi^k(t)|\mu|\psi^k(t)\rangle \right)^2 - \left(\varepsilon^k(t) + \frac{1}{\alpha(t)} \Im\langle\chi^k(t)|\mu|\psi^k(t)\rangle \right)^2 \right] dt \quad (2.15)$$

Cette expression permet de formuler une condition algébrique ([32]) assurant la positivité de l'accroissement. La détermination de $\tilde{\epsilon}^k$ est effectuée à partir de ϵ^k sous le critère imposé par le terme (1.19) :

$$\forall t \in [0, T], \left| \tilde{\epsilon}^k(t) + \frac{1}{\alpha(t)} \Im \langle \chi^k(t) | \mu | \psi^k(t) \rangle \right| \leq \left| \epsilon^k(t) + \frac{1}{\alpha(t)} \Im \langle \chi^k(t) | \mu | \psi^k(t) \rangle \right|$$

tandis que ϵ^{k+1} est déterminé à partir de $\tilde{\epsilon}^k$ sous le critère imposé par le terme (1.18) :

$$\forall t \in [0, T], \left| \epsilon^{k+1}(t) + \frac{1}{\alpha(t)} \Im \langle \chi^k(t) | \mu | \psi^{k+1}(t) \rangle \right| \leq \left| \tilde{\epsilon}^k(t) + \frac{1}{\alpha(t)} \Im \langle \chi^k(t) | \mu | \psi^{k+1}(t) \rangle \right|$$

La figure 1.2 illustre le critère issu de (1.19). L'avantage de cette formulation est qu'elle laisse une liberté de choix relative sur les caractéristiques des champs obtenus. Le champ peut par exemple être astreint à être borné ou encore à prendre ses valeurs dans un ensemble discret. Définissons par exemple les fonctions $sign^+$ et sat_M par :

$$sign^+(x) = \begin{cases} -1 & , x < 0 \\ 1 & , x \geq 0 \end{cases} \quad (2.16)$$

$$sat_M(x) = \begin{cases} -M & , x \leq -M \\ x & , -M \leq x \leq M \\ M & , x \geq M \end{cases} \quad (2.17)$$

et posons alors :

$$\begin{cases} \tilde{\epsilon}^k(t) = M sign^+ \left(-\frac{1}{\alpha(t)} \Im \langle \chi^k(t) | \mu | \psi^k(t) \rangle \right) \\ \epsilon^{k+1}(t) = M sign^+ \left(-\frac{1}{\alpha(t)} \Im \langle \chi^k(t) | \mu | \psi^{k+1}(t) \rangle \right) \end{cases} \quad (2.18)$$

qui assure que les champs obtenus ne prennent comme valeurs que M et $-M$, ou bien

$$\begin{cases} \tilde{\epsilon}^k(t) = sat_M \left(-\frac{1}{\alpha(t)} \Im \langle \chi^k(t) | \mu | \psi^k(t) \rangle \right) \\ \epsilon^{k+1}(t) = sat_M \left(-\frac{1}{\alpha(t)} \Im \langle \chi^k(t) | \mu | \psi^{k+1}(t) \rangle \right) \end{cases} \quad (2.19)$$

qui contraint les champs à prendre leurs valeurs dans l'intervalle $[-M, M]$. Les définitions (1.20) et (1.21) conduisent à des schémas monotones.

Cette approche se prête particulièrement bien à un couplage avec la méthode du *toolkit* [13] présentée au paragraphe 1.3.3 qui suggère de discrétiser les valeurs du champ pour calculer rapidement les propagations. Les différents schémas présentés dans ce paragraphe donnent en effet lieu à des champs bornés par des constantes arbitraires, voire à des champs prenant un nombre fini de valeurs.

Schémas monotones à deux paramètres

Dans un article récent [29], Y. Maday et G. Turinici montrent comment assurer la positivité des deux accroissements précédents. L'algorithme proposé prescrit les formules suivantes pour calculer $\tilde{\epsilon}^k$ et ϵ^{k+1} :

$$\begin{aligned}
\tilde{\epsilon}^k(t) &= (1 - \eta)\epsilon^k(t) - \frac{\eta}{\alpha(t)} \Im \langle \chi^k(t) | \mu | \psi^k(t) \rangle \\
\epsilon^{k+1}(t) &= (1 - \delta)\tilde{\epsilon}^k(t) - \frac{\delta}{\alpha(t)} \Im \langle \chi^k(t) | \mu | \psi^{k+1}(t) \rangle
\end{aligned} \tag{2.20}$$

où δ et η peuvent être arbitrairement choisis dans $[0, 2]$. En reportant ces deux définitions dans les accroissements (1.16) et (1.17), ceux-ci s'écrivent alors sous la forme :

$$\begin{aligned}
J_1(\epsilon^{k+1}) - J_1(\epsilon^k) &= \langle \psi^{k+1}(T) - \psi^k(T) | O | \psi^{k+1}(T) - \psi^k(T) \rangle \\
&+ \int_0^T \alpha(t) \left(\frac{2}{\delta} - 1 \right) (\epsilon^{k+1}(t) - \tilde{\epsilon}^k(t))^2 dt \\
&+ \int_0^T \alpha(t) \left(\frac{2}{\eta} - 1 \right) (\tilde{\epsilon}^k(t) - \epsilon^k(t))^2 dt
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
J_2(\epsilon^{k+1}) - J_2(\epsilon^k) &= \int_0^T \alpha(t) \left(\frac{2}{\delta} - 1 \right) (\epsilon^{k+1}(t) - \tilde{\epsilon}^k(t))^2 dt \\
&+ \int_0^T \alpha(t) \left(\frac{2}{\eta} - 1 \right) (\tilde{\epsilon}^k(t) - \epsilon^k(t))^2 dt
\end{aligned}$$

Cette formule est valable dans les cas où δ et η ne sont pas nuls. Dans le cas contraire, un calcul analogue montre que la différence reste positive. Une formulation plus générale montre que ce calcul reste valable lorsque les coefficients δ et ϵ dépendent du temps. L'accroissement obtenu est alors positif ou nul. La monotonie est donc assurée, dès lors que les assignations (1.22) sont effectuées.

Signalons enfin que le schéma de Krotov (présenté par Tannor dans [27]) correspond au cas où $(\delta, \eta) = (1, 0)$ tandis que celui de Zhu et Rabitz [28] correspond au cas où $(\delta, \eta) = (1, 1)$.

CHAP3

3.1 Sec 3.1

Bibliographie

- [1] Krotov, V.F., Feldman, I.N. *Iterative methods for solving extreme problems*. In the book : Modeling of technical and economic processes, Moscow, Moscow Economic and Statistical Institute (MESI) Publ. (1978), 54–65. (en russe)
- [2] Krotov, V.F., Feldman, I.N. *An iterative method for solving problems of optimal control*. Engineering Cybernetics, 21 :2 (1983), 123–130.
- [3] Tannor, D., Kazakov, V., Orlov, V. *Control of photochemical branching : Novel procedures for finding optimal pulses and global upper bounds*. Time Dependent Quantum Molecular Dynamics, edited by Broeckhove J. and Lathouwers L. Plenum, 347–360 (1992)
- [4] Zhu, W., Rabitz, H. *A rapid monotonically convergent iteration algorithm for quantum optimal control over the expectation value of a positive definite operator*. J. Chem. Phys. 109, 385–391 (1998)
- [5] Maday, Y., Turinici, G. *New formulations of monotonically convergent quantum control algorithms*. J. Chem. Phys. 118, 8191–8196 (2003)
- [6] Maday, Y., Salomon, J. and Turinici, G.. *Monotonic time-discretized schemes in quantum control*. Num. Math., 2005.
- [7] Salomon, J. *Contrôle en chimie quantique : conception et analyse de schémas d'optimisation*. 2005.
- [8] Strang, G. *Accurate partial difference methods I : Linear Cauchy problems..* Arch. Rat. Mech. and An. 12, 392–402 (1963)
- [9] Trélat, E. *Contrôle optimal : théorie et applications*. avril 2016.
- [10] Fattorini, H.O., Kerber, A. *The Cauchy problem* Encyclopedia of mathematics and its applications 18. Section, Analysis. -Cambridge Press. 2009.
- [11] Dossa, A. *Cours de Physique Quantique*. 2015-2016.

-
- [12] Glorieux, Q. *Cours 4 – Les principes de la mécanique quantique 3P001 – Université Pierre et Marie Curie*. 2015-2016.
- [13] Dong, D., Petersen, I.R. *Quantum control theory and applications : A survey*. 2011.
- [14] Bidégaray-Fesquet, B. *Méthodes numériques avancées pour la finance. — Méthodes de splitting*. 2009-2010.