

Université Pierre et Marie Curie, Paris VI

École doctorale des Sciences Mathématiques de Paris Centre

UFR 921

Contrôle en chimie quantique : conception et analyse de schémas d'optimisation

THÈSE

présentée et soutenue publiquement le 30 septembre 2005

pour l'obtention du

Doctorat de l'université Pierre et Marie Curie – Paris 6

(spécialité Mathématiques Appliquées)

par

Julien Salomon

Composition du jury

Rapporteurs : Michel Delfour

Jean-Pierre Puel

Examineurs : Eric Cancès

Pierre Rouchon

Yvon Maday Directeur de thèse

Gabriel Turinici

Mis en page avec la classe thloria.

Remerciements

Les travaux décrits dans ce manuscrit n'auraient pas vu le jour sans le soutien, aussi bien scientifique qu'humain, qu'Yvon Maday et Gabriel Turinici m'ont apporté tout au long de ces trois années. Leurs compétences, la patience avec laquelle ils m'ont encadré ainsi que leur confiance inconditionnelle et leur sympathie m'ont été indispensables pour mener à bien ce travail. Je les remercie très sincèrement de m'avoir donné les moyens de résoudre les différents problèmes présentés ici et de m'avoir permis de découvrir le métier de chercheur.

J'exprime également toute ma gratitude à Michel Delfour et Jean-Pierre Puel pour le temps qu'ils ont consacré à l'évaluation de ce travail, ainsi qu'à Pierre Rouchon et Eric Cancès pour l'intérêt qu'ils ont témoigné en acceptant de participer au jury.

Au cours de ces trois années, un certain nombre de rencontres furent pour moi l'occasion de mieux comprendre certains aspects des problèmes traités. Ce fut le cas de mes conversations avec Claude Dion que je remercie pour ses nombreux conseils, la pertinence de ses remarques et le temps qu'il m'a consacré lors de mon très agréable séjour à l'université d'Umea. Je tiens aussi à exprimer ma reconnaissance à Jérôme Bolte sans qui plusieurs questions n'auraient pu être résolues. Nos discussions furent pour moi extrêmement constructives et m'ont ouvert à de nouveaux horizons. J'ai également une pensée amicale pour Barbara Juillet, qui m'a donné l'occasion de me confronter à de nouvelles problématiques.

Mes séjours dans les universités de Princeton et de Sherbrooke m'ont permis de découvrir de manière très concrète les réalités expérimentales du contrôle quantique. Je remercie Hershel Rabitz pour l'intérêt qu'il porte à nos résultats et l'attention avec laquelle il nous a accueillis dans son laboratoire. De la même manière, je remercie André Bandrauk, Gérard Lagmago-Kamta et Szczepan Chelkowski pour le temps qu'ils m'ont patiemment consacré à Sherbrooke.

Je remercie également les membres de l'Action Concertée Incitative "Simulation moléculaire", dirigée par Claude Le Bris, qui ont été pour moi des partenaires d'une grande

qualité tout au long de ces trois années.

Un salut particulier à Julien Munier et aux membres du laboratoire ACSIOM pour leur invitation et les discussions fructueuses que mon passage à Montpellier a occasionnées. Merci également à Alfio Borzi et Karl Kunisch pour la qualité de leur accueil lors de mon séjour à Graz ainsi que leurs remarques et les pistes prometteuses qu'ils m'ont indiquées.

Certaines discussions informelles m'ont permis de découvrir de nouvelles problématiques ou de nouveaux éclairages sur les questions de contrôle. A ce propos, je remercie Karine Beauchard et Mazyar Mirrahimi de leurs explications sur leurs travaux respectifs de même qu'Emmanuel Trélat et Jean-Baptiste Caillau pour toutes leurs explications sur l'approche géométrique et les méthodes de tir en contrôle optimal.

Je tiens de plus à exprimer ma profonde sympathie à mes chers collègues de bureau : Adrien Roy-Valdez, Sever Hirstoaga, Hammadi Abidi, Hamdi Zorgati, Sonia Benteboula, Marcela Szopos, Alexandra Franchitti, Nicolas Meunier, Paolo Amorim, Radu Ignat, Valérie Rosenbaum et Anne Roquefort. Leur présence à mes côtés fut pour moi d'un grand renfort quotidien.

Je remercie pour leur aide sympathique et efficace dans mes démarches administratives Mme Boulic, Mme Ruprecht, Mme Lorriler et M. David à qui ce manuscrit doit son impression.

Enfin, merci à Sonia Benteboula, Konstantinos et Nathalie Katsonis pour leurs relectures et leurs conseils qui ont contribué à la correction de ce mémoire.

Table des matières

Introduction

Chapitre 1

Contrôle en chimie quantique

1.1	Introduction	4
1.2	Quelques notions utiles de mécanique quantique	6
1.2.1	Introduction	6
1.2.2	La fonction d'onde	6
1.2.3	Observables	7
1.2.4	L'équation de Schrödinger	8
1.2.5	Prise en compte d'un champ électrique externe	9
1.3	Simulations numériques, schémas de propagation de l'équation de Schrödinger	10
1.3.1	Résolution de l'équation sans terme d'interaction	10
1.3.2	Méthode du <i>splitting</i> d'opérateur	11
1.3.3	Discrétisation spatiale	12
1.4	Contrôle et chimie quantique	17
1.4.1	Présentation du problème	17
1.4.2	Contrôle bilinéaire	18
1.4.3	Contrôle exact, problèmes de contrôlabilité	18
1.4.4	Formalisation mathématique du contrôle optimal	20
1.5	Schémas monotones	22
1.5.1	Cadre	22

1.5.2	Equations critiques, mutiplicateur de Lagrange	23
1.5.3	Schémas d'optimisation	23
1.6	Schémas monotones en chimie quantique	27
1.6.1	Introduction	27
1.6.2	Fonctionnelles de coût	27
1.6.3	Schémas monotones	30
1.6.4	Convergence monotone	34

Chapitre 2

Discrétisation des schémas monotones 37

2.1	Introduction	38
2.2	Mise en œuvre des schémas monotones	39
2.2.1	Cadre de la discrétisation	39
2.2.2	Méthodes de calcul du contrôle discret	41
2.2.3	Instabilités	42
2.3	Discrétisation monotone des schémas généraux	43
2.3.1	Fonctionnelles et propagateurs discrets	43
2.3.2	Calcul de la variation	44
2.3.3	Contraintes assurant la monotonie	46
2.4	Schémas monotones discrets en chimie quantique	47
2.4.1	Calcul de la variation	49
2.4.2	Schémas implicites	51
2.4.3	Schémas explicites	59
2.5	Accélération du calcul par réduction du pas de temps	66
2.5.1	Introduction	66
2.5.2	Méthode	66
2.5.3	Résultats numériques	67
2.5.4	Discrétisation spatiale	68

Chapitre 3

Applications, tests numériques 71

3.1	Introduction	72
-----	------------------------	----

3.2	Excitation par champ laser de la liaison $O - H$	73
3.2.1	Introduction	73
3.2.2	Système physique	73
3.2.3	Problème de contrôle	74
3.2.4	Résultats numériques	76
3.2.5	Apport des schémas monotones discrets	76
3.3	Déplacement d'une particule entre deux puits de potentiel	78
3.3.1	Introduction	78
3.3.2	Modèle, problème de contrôle	78
3.3.3	Résultats numériques	80
3.3.4	Conclusion	81
3.4	Contrôle de l'alignement et de l'orientation moléculaire	83
3.4.1	Introduction	83
3.4.2	Système physique	83
3.4.3	Problème de contrôle	86
3.4.4	Résultats obtenus par algorithmes génétiques	88
3.4.5	Autres approches	89
3.4.6	Adaptation des schémas monotones au problème	89
3.4.7	Résultats numériques	92
3.4.8	Conclusions	100
3.5	Perspectives	101

Chapitre 4

Parallélisation des schémas monotones
--

103

4.1	Introduction	104
4.2	Schémas en temps pararéel	104
4.2.1	Cadre général des schémas en temps pararéel	105
4.2.2	Schémas en temps pararéel	106
4.2.3	Préconditionneur pararéel	107
4.2.4	Problème du couplage avec les schémas monotones	110
4.3	Schémas de tracking à horizon fini	110
4.3.1	Schémas de tracking	111

4.3.2	Tracking à horizon fini et pénalisation des champs	112
4.4	Parallélisation des schémas monotones	113
4.4.1	Valeurs initiales et trajectoires de référence	113
4.4.2	Pénalisation du champ	115
4.4.3	Réduction du temps de calcul	117
4.4.4	Algorithme	118
4.4.5	Coût de calcul	119
4.4.6	Résultats numériques	119
4.4.7	Convergence du schéma	121

Chapitre 5	
Sur la convergence des schémas monotones	125

5.1	Introduction	126
5.1.1	Fonctionnelles	126
5.1.2	Schémas monotones étudiés	127
5.2	Propriétés des suites calculées par schémas monotones	129
5.2.1	Borne pour les champs	129
5.2.2	Convergence faible de sous-suites	131
5.2.3	Convergence forte de sous-suites	132
5.3	Propriétés de l'ensemble des points d'accumulation	139
5.3.1	Premières propriétés	139
5.3.2	Compacité	139
5.3.3	Connexité	140
5.4	Estimations des variations des états et adjoints	142
5.4.1	Variations de l'état	142
5.4.2	Variations de l'adjoint	143
5.5	Conditions suffisantes de convergence	144
5.6	Quelques remarques	146

Conclusions & perspectives	147
---------------------------------------	------------

Bibliographie	149
Résumé	155

Introduction

Le travail présenté dans cette thèse tente d'apporter certaines améliorations à une classe d'algorithmes relevant du contrôle quantique, les schémas monotones.

Dans le premier chapitre nous présentons un certain nombre de notions de mécanique quantique nécessaires à une bonne compréhension des objectifs du contrôle quantique. Nous présentons également les méthodes numériques utilisées dans les simulations et les principales caractéristiques des schémas monotones.

Les schémas monotones sont généralement présentés sous une forme non discrétisée en temps. Leur mise en œuvre numérique repose sur des discrétisations liées à des développements limités. Cette approche entraîne cependant parfois des instabilités numériques. Le deuxième chapitre présente plusieurs méthodes de discrétisation temporelle qui permettent de résoudre ce problème en conservant au niveau discret la monotonie des schémas.

Un certain nombre de tests des schémas monotones discrets sont présentés dans le troisième chapitre. Ces expériences numériques permettent d'apporter de nouvelles solutions à des problèmes déjà abordés, soit par des schémas monotones non discrets, soit par d'autres algorithmes d'optimisation. Ces exemples d'applications permettent en outre d'étendre le champ des applications des algorithmes.

Le quatrième chapitre présente une stratégie d'accélération des schémas. La méthode suivie repose sur une parallélisation du calcul, dans le cadre défini par les schémas parallèles. Un algorithme couplant les itérations d'un schéma de calcul parallèle et des schémas monotones est défini et permet une accélération significative des calculs.

A notre connaissance, aucune preuve de convergence des schémas monotones n'a à ce jour été présentée. L'objet du cinquième chapitre est de combler, au moins partiellement, cette lacune. Des premiers résultats concernant l'ensemble des points d'accumulation

des schémas monotones sont ainsi exposés. Une approche variationnelle est également développée pour obtenir des premières conditions nécessaires de convergence des algorithmes.

Tout au long de ce mémoire $\Re(z)$ et $\Im(z)$ désignent les parties réelles et complexes d'un nombre complexe z .

Chapitre 1

Contrôle en chimie quantique

Résumé

Ce chapitre a pour objet d'introduire le cadre des modèles et des problèmes abordés dans cette thèse. Nous introduisons quelques bases élémentaires de physique quantique nécessaires à la bonne compréhension des applications traitées. Nous présentons ensuite les restrictions et approximations qui sont effectuées lors des simulations numériques pour enfin nous concentrer sur le formalisme du contrôle optimal et une classe de schémas numériques qui lui sont associés, les algorithmes monotones.

Sommaire

1.1	Introduction	4
1.2	Quelques notions utiles de mécanique quantique	6
1.2.1	Introduction	6
1.2.2	La fonction d'onde	6
1.2.3	Observables	7
1.2.4	L'équation de Schrödinger	8
1.2.5	Prise en compte d'un champ électrique externe	9
1.3	Simulations numériques, schémas de propagation de l'équation de Schrödinger	10
1.3.1	Résolution de l'équation sans terme d'interaction	10
1.3.2	Méthode du <i>splitting</i> d'opérateur	11

1.3.3	Discrétisation spatiale	12
1.4	Contrôle et chimie quantique	17
1.4.1	Présentation du problème	17
1.4.2	Contrôle bilinéaire	18
1.4.3	Contrôle exact, problèmes de contrôlabilité	18
1.4.4	Formalisation mathématique du contrôle optimal	20
1.5	Schémas monotones	22
1.5.1	Cadre	22
1.5.2	Equations critiques, multiplicateur de Lagrange	23
1.5.3	Schémas d'optimisation	23
1.6	Schémas monotones en chimie quantique	27
1.6.1	Introduction	27
1.6.2	Fonctionnelles de coût	27
1.6.3	Schémas monotones	30
1.6.4	Convergence monotone	34

1.1 Introduction

De nombreux phénomènes, naturels ou artificiels, mettent en jeu des interactions entre rayonnement électromagnétique et matière. C'est par exemple le cas de la photosynthèse, processus au cours duquel l'énergie électromagnétique, captée par la chlorophylle, est transformée en énergie chimique.

Pour maîtriser de tels processus, plusieurs conditions doivent être réunies. Il est tout d'abord primordial de disposer de modèles rendant correctement compte de l'interaction. Ces modèles doivent permettre d'associer des rayonnements à des transferts d'énergie, ou de tenir compte de certaines caractéristiques des rayonnements. Ensuite, il est nécessaire de pouvoir concevoir des champs électromagnétiques répondant aux exigences mises en évidence par la modélisation. C'est cette dernière condition qui fait du laser un candidat privilégié au contrôle des processus physico-chimiques par rayonnement électromagnétique.

Parmi les sources de champ électromagnétique, le laser offre une grande précision sur

les caractéristiques du rayonnement produit. Les fréquences des champs synthétisés peuvent notamment être localisées dans un domaine très restreint. Cette technique est donc un outil de choix dans le contrôle des processus mettant en jeu une interaction rayonnement-matière.

La théorie physique adaptée à la modélisation des interactions rayonnement-matière est la mécanique quantique. Les échelles de temps -de la picoseconde (10^{-12} s) à la femtoseconde (10^{-15} s)- et d'espace -de l'ordre de l'Angström (10^{-10} m) pour les petites molécules, jusqu'au micromètre (10^{-6} m) pour les molécules polyatomiques et de structures métalliques- impliquées dans les processus sont en effet trop petites pour obtenir une modélisation correcte à l'aide de la mécanique hamiltonienne classique.

Le développement actuel des lasers permet d'ores et déjà leur utilisation dans le contrôle de la dynamique des phénomènes quantiques. Historiquement, la recherche dans ce domaine a connu un important essor à la fin des années 80, en particulier après les premiers résultats expérimentaux [1, 2, 3, 4, 5, 6, 7]. Parmi les premières applications ont été la dissociation des liaisons chimiques et la séparation isotopique. Après l'obtention de résultats sur des molécules relativement simples (bi-atomiques), les avancées théoriques et techniques ont permis d'aborder des systèmes plus complexes. C'est par exemple le cas dans [1] où le contrôle de la dissociation du système organo-métallique $CpFe(CO)_2Cl$ a permis de maximiser ou de minimiser le quotient entre les quantités d'ions $CpFeCOCl^+$ et $FeCl^+$ obtenues. Par la suite, des applications ont été proposées dans le cas de champs forts. L'utilisation de lasers adaptés a permis la synthèse de CH_3CO à partir de $(CH_3)_2CO$, de CF_3 ou CH_3 à partir de CH_3COCF_3 et de $C_6H_5CH_3$ à partir de $C_6H_5COCH_3$ [2].

Le contrôle par laser a permis ensuite de concevoir des rayonnements de hautes fréquences à partir de rayonnements de fréquences basses [8]. La génération de fluorescence par laser ou le contrôle de la dynamique moléculaire sur des molécules biologiques sont actuellement envisagés.

A plus long terme, la manipulation d'états quantiques permettra d'envisager la construction d'unités de stockage d'information à l'échelle nanométrique. L'état d'une molécule, commandé par laser, coderait l'information. Plusieurs expériences ont donné des résultats dans cette direction. La maîtrise du contrôle quantique par un champ électrique permettrait également une miniaturisation des composants électroniques. Il est ainsi

envisagé de synthétiser des interrupteurs moléculaires commandés par un champ électrique. Ces différents progrès laissent entrevoir, à plus long terme, la conception d'ordinateurs quantiques [9, 10].

1.2 Quelques notions utiles de mécanique quantique

1.2.1 Introduction

La théorie quantique de la matière est actuellement couramment appliquée dans les procédés et les systèmes techniques. Ses résultats sont utilisés dans des domaines tels que la chimie, la physique des états solide et liquide, la science des matériaux... Les travaux exposés dans cette thèse ont pour objet d'améliorer le contrôle de la dynamique moléculaire par rayonnement laser. Nous exposons ici les concepts utiles dans ce cadre et invitons le lecteur à consulter par exemple [11] pour une présentation plus détaillée des concepts.

1.2.2 La fonction d'onde

La théorie quantique est une description des objets élémentaires qui forment la matière, des interactions entre particules ou avec des champs internes ou externes. Contrairement à la physique classique et comme c'est le cas dans la mécanique hamiltonienne, l'espace le mieux adapté à la description des systèmes en physique quantique n'est pas l'espace tridimensionnel usuel, mais 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, les variables du système sont l'ensemble des coordonnées des particules. Dans les applications traitées dans cette thèse les variables de spin ne sont pas prises en compte, nous les omettons donc tout au long de cet exposé. L'espace des configurations est alors a priori $\Omega = \mathbb{R}^{3N}$. A un instant t , le système quantique est alors décrit par une fonction à valeurs complexes, notée $\psi(t)$ appartenant à l'espace $\mathbb{L}^2(\Omega; \mathbb{C})$ de norme égale à 1. Cette fonction $\psi(t)$ est appelée *fonction d'onde* ou *vecteur d'état* du système. Pour des raisons de commodité, les notations $\psi(x, t)$ ou $\psi(t)$ représentent dans la suite la grandeur $\psi(t)(x)$. L'interprétation physique associée à cette fonction est la suivante : pour toute

configuration x de Ω , $|\psi(x, t)|^2$ est la densité de probabilité que le système se trouve dans la configuration x à l'instant t . L'approximation de la physique classique consiste à supposer que cette fonction est une masse de Dirac. Celle-ci est justifiée à l'échelle macroscopique, où les dimensions des objets sont suffisamment grandes pour pouvoir négliger l'incertitude sur leurs positions causée par cette représentation probabiliste de la matière.

Cette description est résumée par le premier postulat de la mécanique quantique :

Premier postulat. 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} .

Dans la suite de ce chapitre $\|\cdot\|$ et $\langle \cdot | \cdot \rangle$ désignent la norme et le produit hermitien associés à \mathcal{H} sont notés .

1.2.3 Observables

La mesure de grandeurs physiques en mécanique quantique relève de règles particulières. Si une particule classique possède à tout instant des caractéristiques bien définies, qu'il est possible de mesurer sans pour autant modifier l'état du système, en mécanique quantique, une grandeur ne prend une valeur déterminée que lors d'une mesure. Le deuxième postulat formalise cette idée.

Deuxième postulat. A toute grandeur physique (scalaire) \mathcal{A} correspond un opérateur A auto-adjoint sur \mathcal{H} , vérifiant la propriété suivante : le résultat de la mesure d'une grandeur physique \mathcal{A} ne peut être qu'un élément du spectre de A .

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

$$\langle \psi | A | \chi \rangle = \int_{\Omega} \bar{\psi} A \chi,$$

où ψ et χ sont des fonctions de $\mathbb{L}^2(\Omega, \mathbb{C})$ et où A est un opérateur arbitraire défini de $\mathbb{L}^2(\Omega, \mathbb{C})$ dans lui-même.

Quelques correspondances entre grandeurs physiques et opérateurs sont indiquées dans le tableau suivant :

Grandeur physique	Observable
Position	\hat{x}
Impulsion	$-i\frac{\hbar}{m}\nabla$
Energie cinétique	$-\frac{\hbar^2}{2m}\Delta$
Energie potentielle	\hat{V}
Energie	$-\frac{\hbar^2}{2m}\Delta + \hat{V}$

Les notations utilisées dans ce tableau sont les suivantes :

- \hat{x} représente la multiplication par x ,
- \hat{V} représente la multiplication par $V(x, t)$, le potentiel électrostatique auquel est soumis le système,
- ∇ représente le vecteur formel dont la composante j est ∂_{x_j} ,
- Δ représente le Laplacien,
- \hbar est la constante de Planck, de valeur $\hbar = 6,63.10^{-34} J.s^{-1}$,
- m est la masse de la particule étudiée.

Dans les différentes modélisations présentées dans cette thèse, le potentiel V est indépendant du temps. L'opérateur H , défini par :

$$H = -\frac{\hbar^2}{2m}\Delta + \hat{V}, \quad (1.1)$$

associé à l'énergie du système est appelé *Hamiltonien* du système. Dans cette thèse, nous utiliserons les unités atomiques d'espace et de temps, ce qui permet de fixer $\hbar = 1$.

Nous conservons la notation (1.1) dans la suite. Dans de nombreux cas, le spectre de cet opérateur est constitué d'une partie discrète et d'une partie continue [12]. C'est à cette partie discrète que la dénomination "quantique" se rapporte. Les valeurs propres de cet opérateur correspondent aux différentes énergies associées aux fonctions propres. Les vecteurs propres de l'Hamiltonien sont appelées *harmoniques*.

1.2.4 L'équation de Schrödinger

L'évolution de la fonction d'onde au cours du temps suit un troisième postulat.

Troisième postulat. Entre deux mesures, l'évolution de l'état est régie par l'équation de

Schrödinger

$$i\partial_t\psi(x, t) = H\psi(x, t), \quad (1.2)$$

où H est l'opérateur défini par (1.1). Lorsque l'Hamiltonien est indépendant du temps, la solution de cette équation avec condition initiale existe et est unique. L'opérateur qui à une condition initiale ψ_0 et un temps t associe $\psi(t)$ est appelé *propagateur* dans la suite. Il est décrit formellement par un terme exponentiel :

$$\psi(x, t) = e^{-itH}\psi_0(x).$$

La résolution de 1.2 est appelée quant à elle *propagation*. Lorsque H dépend explicitement du temps, l'existence d'un propagateur se prouve au cas par cas. La solution de cette équation est de norme constante au cours du temps, ce qui constitue une propriété algébrique en accord avec la signification physique présentée à la section 1.2.2. Signalons dès maintenant que de par l'existence d'une partie discrète dans le spectre de l'opérateur H , il arrive que certaines propagations se fassent dans un sous-espace de dimension finie de $\mathbb{L}^2(\Omega; \mathbb{C})$, alors identifié à \mathbb{C}^N , où N est un entier.

1.2.5 Prise en compte d'un champ électrique externe

Dans le cas où le système est soumis à un champ laser, un terme supplémentaire décrivant l'interaction entre le laser et le système moléculaire doit être introduit ; dans le cadre de l'approximation dipolaire, l'équation d'évolution s'écrit alors :

$$i\partial_t\psi(x, t) = H\psi(x, t) - \vec{\varepsilon}(t) \cdot \vec{D}(x)\psi(x, t),$$

où \vec{D} est le moment dipolaire électrique (permanent) associé au système et $\vec{\varepsilon}$ le champ électrique. Notons que dans ce modèle, $\vec{\varepsilon}$ ne dépend que de la variable de temps. Ceci est justifié par le fait qu'à l'échelle du système moléculaire le champ laser peut être considéré comme uniforme en espace. Dans les applications physiques traitées par le contrôle quantique, les champs électriques sont souvent polarisés. Nous considérons donc que le vecteur $\vec{\varepsilon}$ reste colinéaire à un vecteur fixé au cours du processus de contrôle. Nous choisissons les axes de coordonnées tels que le vecteur $\vec{\varepsilon}$ soit porté par l'un des axes. L'équation résultante est alors :

$$i\partial_t\psi(x, t) = H\psi(x, t) - \mu(x)\varepsilon(t)\psi(x, t), \quad (1.3)$$

où μ est la composante suivant l'axe du champ électrique.

Signalons que pour des systèmes plus complexes, il est parfois nécessaire d'ajouter des termes d'ordre plus élevé pour rendre compte correctement de l'influence du rayonnement ε sur l'évolution de la fonction d'onde ψ . Les modifications géométriques du système engendrent parfois l'apparition d'un moment dipolaire induit. Un paramètre de polarisabilité α est alors défini, conduisant à l'introduction d'un terme quadratique par rapport au champ ε dans l'Hamiltonien :

$$i\partial_t\psi(x, t) = H\psi(x, t) - [\mu(x)\varepsilon(t) + \alpha(x)\varepsilon^2(t)]\psi(x, t).$$

Un exemple de système relevant de cette modélisation est présenté plus en détail au chapitre 3 de cette thèse.

Eu égard à la classe des systèmes considérés dans la suite de ce mémoire, H est appelé *Hamiltonien interne*.

1.3 Simulations numériques, schémas de propagation de l'équation de Schrödinger

L'objet de ce paragraphe est de présenter les méthodes utilisées au cours de cette thèse pour résoudre numériquement l'équation de Schrödinger. Outre le fait que ces méthodes seront les briques élémentaires des codes de calculs utilisés dans le chapitre 3, leurs définitions exactes sont à la base des discrétisations de schémas de calcul de contrôle optimal du chapitre 2.

1.3.1 Résolution de l'équation sans terme d'interaction

Présentons tout d'abord une méthode de résolution de (1.2) lorsque le champ $\varepsilon(t)$ (de l'équation (1.3)) est nul. La méthode la plus simple dans ce cas consiste à trouver une décomposition spectrale de H . En effet, supposons avoir déterminé un ensemble orthonormal $(\lambda_j, \Psi_j)_{j \in J}$ de fonctions d'onde vérifiant :

$$\forall j \in J, H\Psi_j = \lambda_j\Psi_j,$$

où J est un ensemble d'indices. Alors pour toute condition initiale ψ_0 de (1.2), se décompose suivant $(\Psi_j)_{j \in J}$ selon :

$$\psi_0 = \sum_{j \in J} c_j \Psi_j,$$

avec :

$$\sum_{j \in J} |c_j|^2 = 1,$$

la fonction

$$\psi(t) = \sum_{j \in J} c_j e^{-i\lambda_j t} \Psi_j$$

est solution de (1.2).

1.3.2 Méthode du *splitting* d'opérateur

Dans le cas plus général où le champ ε est non nul, la résolution de l'équation (1.3) est impossible analytiquement. Le recours à une discrétisation temporelle s'avère donc nécessaire. Une idée simple consiste à exponentier à chaque pas de temps l'Hamiltonien complet $H - \mu(x)\varepsilon(t)$. Le problème posé par cette méthode est l'évaluation de l'exponentielle. Pour appliquer l'exponentielle d'un opérateur à un vecteur, la méthode la plus fréquemment employée consiste à diagonaliser cet opérateur pour se retrouver dans une situation analogue à celle décrite à la section 1.3.1. Mais dans les applications rencontrées, les opérateurs à exponentier ne commutent pas et ne peuvent donc être diagonalisés simultanément. Par exemple, dans le cas fréquemment traité dans cette thèse où :

$$H = H_0 + V(x),$$

où $H_0 = -\frac{1}{2m}\Delta$ est l'opérateur lié à l'énergie cinétique, les opérateurs $H_0 + V(x) - \mu(x)\varepsilon(t)$ et $H_0 + V(x) - \mu(x)\varepsilon(t')$ ne commutent généralement pas pour $t \neq t'$. Pour les appliquer successivement, il faut donc effectuer des changements de base. Notons que l'opérateur H_0 est diagonal dans la base de Fourier, alors que $V(x) - \mu(x)\varepsilon(t)$ l'est dans l'espace physique. Il est donc facile d'appliquer $e^{-iH_0\Delta T}$ et $e^{-i(V(x)-\mu(x)\varepsilon(t))\Delta T}$ pour tout pas de temps ΔT en effectuant des changements de bases appropriés. Cette remarque

conduit naturellement à utiliser une méthode de *splitting* d'opérateur centré sur le potentiel définie de la manière suivante :

$$\psi(x, t + \Delta T) \approx e^{-iH_0 \frac{\Delta T}{2}} e^{-i(V(x) - \mu(x)\varepsilon(t))\Delta T} e^{-iH_0 \frac{\Delta T}{2}} \psi(x, t). \quad (1.4)$$

L'erreur issue de cette approximation par rapport au pas de discrétisation en temps ΔT est un $O(\Delta T^3)$. L'application de l'opérateur $e^{-iH_0 \Delta T}$ s'effectue par un changement de base calculé par l'intermédiaire d'une transformée de Fourier rapide. Une propriété importante de cette méthode est qu'elle conserve la norme \mathbb{L}^2 de la fonction d'onde ψ au cours du temps. Cette propriété importante de l'équation exacte (1.2) est donc conservée après discrétisation. Les opérateurs exponentiels étant anti-hermitiens, leurs exponentielles sont en effet unitaires.

Signalons que d'autres méthodes de résolution approchée de (1.3) 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. Une exception existe avec le schéma implicite de Cranck-Nicholson défini dans notre cas de la manière suivante :

$$i \frac{\psi_{j+1} - \psi_j}{dt} = (H_0 - \mu\varepsilon_j) \frac{\psi_{j+1} + \psi_j}{2},$$

où les indices j se rapportent à la discrétisation en temps et où dt est le pas associé à celle-ci. Ce schéma conserve la norme du vecteur p_j . En tant que schéma implicite, son inconvénient majeur est d'être coûteux.

1.3.3 Discrétisation spatiale

Les simulations découlant de la résolution de (1.2) sont effectuées dans des bases indexées par des ensembles finis et les fonctions d'onde sont donc représentées par un nombre fini de scalaires. Nous présentons dans cette section la méthode issue de cette démarche.

Méthode de Galerkin

L'idée sous-jacente aux méthodes de Galerkin consiste à chercher les solutions de (1.2) sous forme de combinaisons linéaires d'un petit nombre de fonctions, convenablement choisies pour leur qualité d'approximation a priori. Considérons une famille finie

libre de fonctions $(\Psi)_{j \in J}$, où J est un ensemble fini, et supposons que la solution de (1.2) se décompose suivant cette famille selon :

$$\psi(x, t) = \sum_{j \in J} c_j(t) \Psi_j(x).$$

Quitte à utiliser le procédé d'orthonormalisation de Gramm-Schmidt, il n'est pas restrictif de supposer la famille $(\Psi_j)_{j \in J}$ orthonormale. En choisissant les fonctions Ψ_j comme fonctions test, une version faible de l'équation (1.2) est donnée par :

$$\forall k \in J, \langle \Psi_k | \partial_t + i(H - \mu\varepsilon(t)) | \sum_{j \in J} c_j(t) \Psi_j \rangle = 0,$$

soit :

$$i\dot{C}(t) = (M_H - M_\mu\varepsilon(t))C(t), \quad (1.5)$$

où :

- C est le vecteur de composantes c_j ,
- M_H et M_μ sont les matrices $(\langle \Psi_k | H | \Psi_l \rangle)_{(k,l) \in J \times J}$ et $(\langle \Psi_k | \mu | \Psi_l \rangle)_{(k,l) \in J \times J}$.

La résolution exacte de (1.2) en ψ étant en général impossible, la méthode de Galerkin propose de résoudre cette équation en C . La méthode utilisée est analogue à celle de la section 1.3.2 et définie par l'approximation (1.4). Cet algorithme nécessite d'exponentier à chaque pas de temps la matrice $(M_H - M_\mu\varepsilon(t_i))$, où t_i est la variable de temps discrétisée. L'inconvénient de cette méthode est le coût de l'exponentiation. Cette opération est en fait équivalente à une diagonalisation dont la complexité est de l'ordre de N^3 , où N est la dimension de la base. Un choix de base approprié permet de diagonaliser M_H et M_μ et par conséquent d'effectuer un certain nombre d'exponentiations lors d'un pré-calcul.

Différentes bases

Selon le problème abordé, les bases utilisées pour les simulations sont différentes. A précision de calcul fixée, la pertinence d'un choix de base est mesurée par la dimension de la base, qui doit être faible, et par son adaptation aux opérateurs rencontrés.

Base de Fourier

Nous supposons de plus que les particules soumises au contrôle sont localisées en espace, c'est-à-dire que la fonction d'onde est nulle en dehors d'un intervalle de la forme $[0, L]$. Ce dernier est alors discrétisé par une suite $(x_j)_{j=1\dots N}$ avec $x_1 = 0$ et $x_N = L$ et la fonction d'onde $\psi(t)$ est représentée par un vecteur dont les composantes sont des approximations des valeurs $\psi(x_j, t)$. Dans les discrétisations spatiales associées aux simulations effectuées dans le cadre de cette thèse, le paramètre N est de l'ordre de 10^2 . La base de Galerkin utilisée est alors la base canonique des polynômes trigonométriques de degré N et l'approximation effectuée est une interpolation.

Comme stipulé à la section 1.3.1, l'application de l'opérateur $e^{-iH_0 \frac{\Delta T}{2}}$ lors du calcul de la propagation par la formule de splitting (1.4) est effectuée par l'intermédiaire d'un changement de base associé à une transformée de Fourier. Le vecteur $(\psi(x_j, t))_{j=1\dots N}$ est complété par imparité. Une fois ceci effectué, il suffit de multiplier le vecteur obtenu composante par composante par $(e^{-i\xi_j^2 \frac{\Delta T}{2}})_j$ qui correspond aux coefficients diagonaux de la matrice diagonale $e^{-iH_0 \frac{\Delta T}{2}}$ dans la base de Fourier.

Notons que des calculs en dimension supérieure sont limités par les coûts de calculs, pour l'instant trop importants. Les méthodes exposées dans cette thèse peuvent cependant s'adapter théoriquement à des calculs en dimension d'espace supérieure à 1.

Bases spectrales

D'autres stratégies existent pour construire $(\Psi_j)_{j \in J}$: il est par exemple possible de choisir les premiers vecteurs de la base associée à la décomposition spectrale de H telle qu'elle est présentée à la section 1.3.1. Cette approximation reste valable lorsque ε est suffisamment petit, ce qui est le cas dans le cadre de l'approximation dipolaire. Un cas d'application de cette méthode est présenté au chapitre 3 de cette thèse.

Bases réduites

Comme nous l'avons signalé à la section 1.2.4, l'évolution de la fonction d'onde au cours du temps a parfois lieu dans le voisinage d'une variété différentielle de petite dimen-

sion. Suivant cette observation, une autre solution consiste à extraire une famille convenable de l'ensemble des vecteurs calculés lors d'une résolution fine, c'est-à-dire dans des bases de grandes dimensions et avec un petit pas de temps. C'est l'approche proposée par les méthodes de bases réduites.

Après avoir calculé finement une solution $S = (\psi(t_i))_{t_i \in [0, T]}$ pour un champ donné, l'extraction d'une famille de vecteurs "représentatifs" peut être effectuée de différentes manières. Une première méthode consiste à utiliser un algorithme glouton. La base est construite vecteur par vecteur. Le vecteur ajouté à chaque itération de la construction maximise la distance à l'espace vectoriel engendré par la base de l'itération précédente. Une autre méthode d'extraction est de choisir comme base les vecteurs associés aux plus grandes valeurs propres de $S^t S$, où ${}^t S$ est la transposée de S , vue comme matrice. Cette méthode est appelée *analyse en composantes principales*.

Estimation de l'erreur

Quelque soit la base choisie, l'erreur peut être estimée à l'aide du lemme de Céa, qui assure que l'erreur de l'approximation de Galerkin est contrôlée par la distance entre la solution exacte et l'espace vectoriel engendré par $(\Psi_j)_{j \in J}$:

Lemme 1. *Soit a une forme bilinéaire coercive continue et f une application linéaire définies sur un espace de Hilbert \mathcal{H} . Soit également $\mathcal{H}' \subset \mathcal{H}$ un sous espace. Si u' et u sont respectivement les solutions des problèmes :*

$$\begin{aligned} \forall v' \in \mathcal{H}', \quad a(u', v') &= f(v'), \\ \forall v \in \mathcal{H}, \quad a(u, v) &= f(v), \end{aligned}$$

alors :

$$\exists C > 0 / \|u - u'\| \leq C \text{dist}(u, \mathcal{H}'),$$

où $\|\cdot\|$ représente la norme associée à \mathcal{H} et $\text{dist}(u, \mathcal{H}')$ la distance de u à l'espace \mathcal{H}' .

La figure 1.1 rend compte de l'erreur due à l'approximation en fonction du cardinal de la base de Galerkin, dans le cas du premier exemple du chapitre 3. Nous observons qu'une approximation correcte est obtenue à partir d'une base de 25 vecteurs, alors qu'un traitement de ce problème par une discrétisation en espace décrite à la section 1.3.3 donne lieu à un calcul en dimension supérieure à 60. Un inconvénient de ces méthodes est que les bases produites ne diagonalisent pas a priori les opérateurs rencontrés.

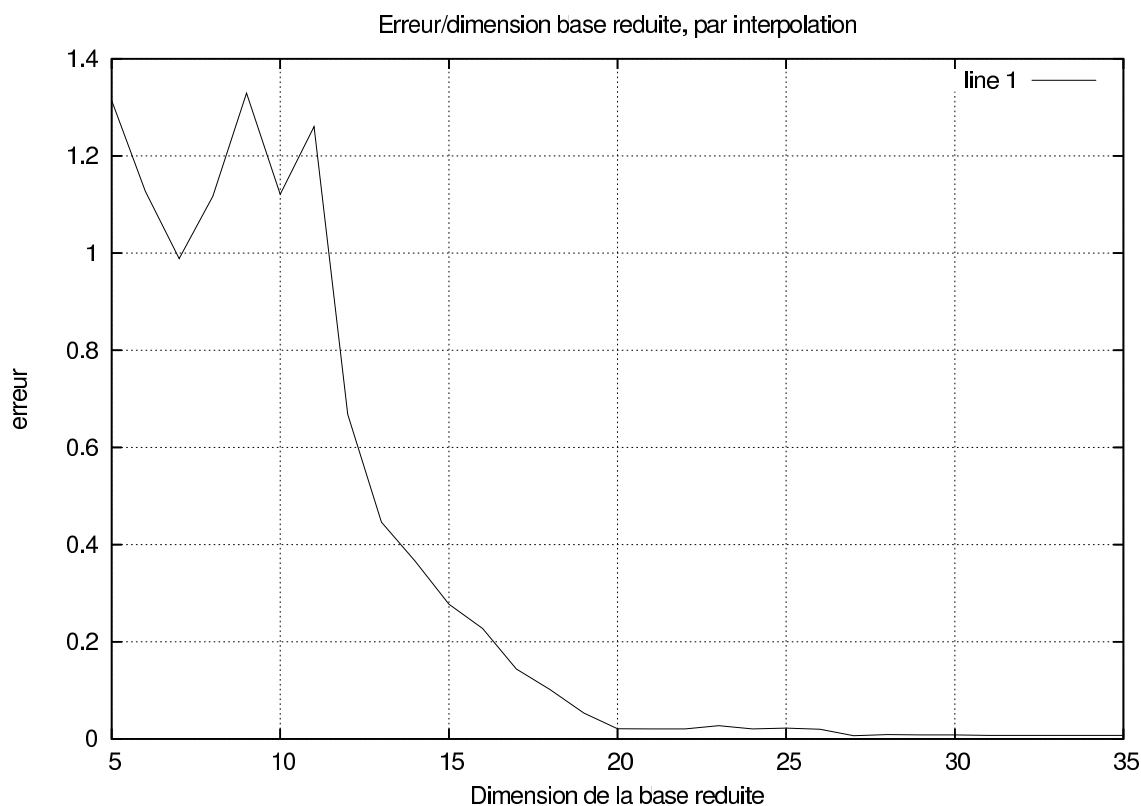


FIG. 1.1 – Distance entre la fonction $\psi(T)$, calculée par une propagation par splitting associée à une discrétisation en variables d’espace physique telle que présentée au début de la section 1.3.3, et l’espace engendré par une base de Galerkin, obtenue ici par une analyse en composantes principales. Cette distance est exprimée en fonction du cardinal de la base de Galerkin.

Discrétisation des valeurs du champ électrique

Signalons enfin qu’il est possible d’accélérer le calcul par discrétisation de l’ensemble des valeurs du champ ε , $(\varepsilon_l)_{l \in L}$. Cette méthode, appelée *toolkit* [13], est particulièrement efficace du point de vue algorithmique puisque les calculs d’optimisation nécessitent souvent des calculs de propagation avec des champs bornés¹. Sur l’exemple de (1.4), cette approche consiste tout d’abord à pré-calculer les matrices $(e^{-i(V(x)-\mu(x)\varepsilon_l)\Delta t})_{l \in L}$. La résolution s’effectue ensuite en appliquant $e^{-i(V(x)-\mu(x)\varepsilon_{l_i})\Delta t}$ au lieu de $e^{-i(V(x)-\mu(x)\varepsilon(t_i))\Delta t}$

¹Cette borne peut être issue des algorithmes utilisés, ou de contraintes liées aux expérimentations.

où ε_{l_i} est la meilleure approximation de $\varepsilon(t_i)$ parmi $(\varepsilon_l)_{l \in L}$. Il n'y a alors plus d'assemblage de matrices ou de changement de base à effectuer lors du calcul de la propagation. Cette méthode peut être considérée comme une méthode de bases réduites étendue au paramètre ε .

1.4 Contrôle et chimie quantique

1.4.1 Présentation du problème

Considérons un système abstrait décrit par une variable d'état X appartenant à un espace de Hilbert \mathcal{H} complexe² et dont l'évolution est décrite par une équation de la forme :

$$\begin{cases} \partial_t X + A(u)X = 0 \\ X(0) = X_0, \end{cases} \quad (1.6)$$

où X_0 est un état initial, u un paramètre du modèle appartenant à un ensemble \mathcal{U} , sur lequel un expérimentateur peut agir et où $A(u)$ est un opérateur défini sur \mathcal{H} . Supposons maintenant que l'on souhaite que le système adopte une configuration prescrite ou plus généralement, qu'une grandeur qui lui est associée soit maximale. Pour atteindre cet objectif, l'expérimentateur peut jouer sur le paramètre u auquel il soumet le système. Le processus qui consiste à transférer le système d'un état initial X_0 donné à un état final $X(T)$ convenable vis-à-vis de critères prédéfinis, portant sur $X(t)$ ou des caractéristiques du paramètre u , est appelé *contrôle*. Par extension, le terme *contrôle* désigne également la fonction u par laquelle est réalisée ce processus. L'espace \mathcal{U} est appelé *ensemble des contrôles admissibles*.

Dans ce mémoire, nous ne considérons principalement que des problèmes de contrôle sur un intervalle borné $[0, T]$. Une autre approche, le *tracking*, traite de problèmes de contrôle sur un intervalle éventuellement non borné [14]. Nous reviendrons néanmoins sur cette approche au chapitre 4.

²Nous conservons les notations \mathcal{H} , $\langle \cdot | \cdot \rangle$, $\| \cdot \|$ de la section 1.2.2 pour des raisons de simplicité. Aucune spécificité mathématique ne différencie les deux espaces notés \mathcal{H} .

1.4.2 Contrôle bilinéaire

Lorsque l'opérateur A est affine par rapport à la variable u , on parle de *contrôle bilinéaire*, puisque le terme de contrôle multiplie la variable d'état X . De nombreux systèmes physiques ou biologiques peuvent être modélisés par des équations d'évolution relevant du contrôle bilinéaire. Un certain nombre de modèles simples sont présentés dans [15].

Citons par exemple le cas du contrôle de l'état d'une poutre, décrit par l'équation :

$$\partial_{tt}h(x, t) + \partial_{xxxx}h(x, t) + p(t)\partial_{xx}h(x, t) = 0,$$

où $h(x, t)$ est la cote de la poutre à l'abscisse x et au temps t , et où p est la charge axiale. Cette équation peut se mettre sous la forme de l'équation (1.6) en posant :

$$X(t, x) = \begin{pmatrix} h(x, t) \\ \partial_t h(x, t) \end{pmatrix}.$$

L'équation d'évolution est alors :

$$\partial_t X(x, t) + \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ \partial_{xxxx} + p(t)\partial_{xx} & 0 \end{pmatrix} X(x, t) = 0.$$

Cette modélisation relève donc du contrôle bilinéaire puisque la matrice dépend de manière affine du terme de contrôle $p(t)$. Pour ce qui nous concerne, remarquons que l'équation de Schrödinger avec terme d'interaction (1.3) rentre également dans ce cadre en considérant la fonction d'onde ψ comme variable d'état et le champ électrique ε comme le terme de contrôle.

1.4.3 Contrôle exact, problèmes de contrôlabilité

Contrôlabilité

Deux approches complémentaires traitent de problèmes de contrôle : le contrôle exact et le contrôle optimal. Le contrôle exact a pour objet d'énoncer des critères portant sur les paramètres du modèle permettant de décider quels sont les états accessibles

-parfois appelés *états cibles* dans ce mémoire- de manière exacte. Ceci revient, plus précisément, à étudier les conditions qui assurent la surjectivité de l'application :

$$\begin{aligned}\phi: \mathcal{U} \times \mathbb{R} &\rightarrow \mathcal{H} \\ (u, T) &\mapsto X(T),\end{aligned}$$

où $X(T)$ est la solution de (1.6) au temps T . Dans le cas où cette surjectivité est établie, le système est dit *contrôlable*.

Résultats de contrôlabilité pour l'équation de Schrödinger

Dans le cadre du contrôle quantique, l'équation d'évolution (1.6) est l'équation de Schrödinger avec terme d'interaction (1.3). L'espace \mathcal{H} est soit $\mathbb{L}^2(\Omega, \mathbb{C})$ soit \mathbb{C}^N , dans le cas où les fonctions d'ondes appartiennent à un espace de dimension finie. Le terme ε de (1.3) est fixé par l'expérimentateur. Cette variable représente donc dans la suite le terme contrôle associé à cette équation. L'ensemble \mathcal{U} est généralement $\mathbb{L}^2([0, T], \mathbb{R})$. Les fonctions d'onde étant toujours de norme 1, on considère généralement que l'espace d'arrivée de ϕ est, plutôt que l'espace \mathcal{H} lui-même, sa sphère unité \mathcal{S} .

En dimension finie, l'équation (1.3) se réduit à une équation différentielle ordinaire :

$$i\dot{\psi}(t) = (A - \varepsilon(t)B)\psi(t),$$

où $\psi(t)$ est un vecteur de dimension finie N et A et B des matrices de dimensions $N \times N$. Plusieurs méthodes ont été développées pour déterminer des critères de contrôlabilité de cette équation. Une première série de travaux, reposant sur la théorie des groupes et algèbres de Lie, a été décrite dans [16, 17]. L'idée sous-jacente à cette approche est de rechercher des conditions sur les matrices A et B assurant que l'algèbre de Lie engendrée par iA et iB soit $U(N)$, le groupe des matrices unitaires de dimension N (ou $SU(N)$ le groupe spécial unitaire, selon les cas). Certaines conditions suffisantes pour réaliser ce critère sont énoncées dans [18, 19].

Une approche par la théorie des graphes a également été testée dans [20, 21, 22, 23, 24]. Cette approche, utilisant la notion de *graphe de connectivité* associé aux matrices A et B , étudie la contrôlabilité d'un système à partir de la structure de l'Hamiltonien. Les deux approches mentionnées utilisent seulement les propriétés génériques des matrices A et

B et non l'évaluation précise de chacun de leurs coefficients.

Dans le cas de la dimension infinie deux résultats complémentaires ont été obtenus sur (1.3). Le premier est un résultat négatif, résumé dans le théorème suivant [22, 25, 21] :

Théorème 1. *Reprenant les notations de (1.3), supposons que μ soit un opérateur borné de l'espace de Sobolev $H^2(\Omega)$ dans lui-même et que H_0 génère un semi-groupe d'opérateurs linéaires continus sur $H^2(\Omega)$. Si $\psi_\varepsilon(x, t)$ représente la solution de (1.3), alors l'ensemble des états accessibles à partir d'une configuration initiale ψ_0 défini par :*

$$\mathcal{AS} = \cup_{T>0} \{ \psi_\varepsilon(t) ; \varepsilon \in \mathbb{L}^2([0, T]) \}$$

est contenu dans une union dénombrable de sous-ensembles compacts de $H^2(\Omega)$. En particulier, le complémentaire de cet ensemble dans \mathcal{S} , la sphère unité de $\mathbb{L}^2(\Omega)$, est dense dans \mathcal{S} .

Des résultats de contrôlabilité locale entre états au voisinage d'états propres de l'Hamiltonien interne ont cependant été présentés dans [26] dans le cas du potentiel :

$$V(x) = \begin{cases} x = +\infty, & \text{si } x \in [-\frac{1}{2}, \frac{1}{2}] \\ x = 0 & \text{sinon,} \end{cases}$$

Une des limites des travaux concernant la contrôlabilité de systèmes quantiques est qu'ils ne fournissent pas de méthodes constructives : les résultats obtenus ne débouchent en général pas sur des algorithmes. Quelques exceptions existent dans certains cadres plus restreints. Lorsque le but du contrôle est d'effectuer une redistribution des populations des états propres, il est possible de générer d'une manière constructive des lois de contrôle à partir de champs sinusoïdaux de fréquences fixées [22].

1.4.4 Formalisation mathématique du contrôle optimal

Contrôle optimal

Une autre approche, celle qui est suivie dans cette thèse, consiste à formuler les questions de contrôle sous forme de problèmes d'optimisation. Celle-ci débouche sur des algorithmes itératifs de calcul de contrôle qui viennent pallier le manque de compréhension intuitive de certains problèmes de contrôle, notamment en contrôle quantique. C'est cette approche que nous présentons dans la suite.

Fonctionnelle de coût

Pour transformer le problème de contrôle en un problème d'optimisation puis concevoir des algorithmes de calcul, il nous faut introduire une fonctionnelle mesurant la qualité du contrôle. Cette fonctionnelle doit d'une part rendre compte de certains critères portant sur une observable ou sur l'écart à une cible prescrite et d'autre part pénaliser le champ de contrôle de sorte qu'il reste physiquement raisonnable. Un exemple simple de telle fonctionnelle est :

$$J(u) = g(X(T)) + \int_0^T f(X(t))dt + \int_0^T h(u(t))dt, \quad (1.7)$$

Dans cette fonctionnelle g, f, h sont des fonctions définies sur \mathcal{H} mesurant des grandeurs associées aux états et au contrôle. Le problème peut alors se formuler de la manière suivante.

Chercher u^* tel que :

$$u^* = \operatorname{argmax} J(u),$$

sous les contraintes :

$$\left\{ \begin{array}{l} \partial_t X + A(u)X = 0 \\ X(0) = X_0 \\ u \in \mathcal{U}. \end{array} \right.$$

Dans le cas de la fonctionnelle (1.7), les extrema obtenus seront donc le fruit d'un compromis entre des contraintes portant sur X et u .

Pour résoudre ce type de problème, plusieurs méthodes sont utilisées. Certaines situations se prêtent bien à une optimisation par algorithmes de type gradient. Lorsque les dimensions des espaces sont trop importantes, des algorithmes stochastiques sont plus appropriés. Ces algorithmes stochastiques d'ordre zéro³ présentent l'avantage de fournir des contrôles de forme prédéfinie, en restreignant l'espace \mathcal{U} à un espace de petite dimension. En revanche, leurs convergences sont lentes et les champs qui en résultent ne sont généralement pas des points critiques de J . Nous présentons plus en détail cette classe de méthodes sur un exemple précis à la section 3.4 du chapitre 3.

³L'ordre de ces méthodes est nul dans le sens où aucune évaluation des dérivées des fonctionnelles traitées n'est effectuée.

Il est également possible d'utiliser une autre classe d'algorithmes itératifs, appelés *schémas monotones* ou encore *algorithmes monotones*. Cette dénomination est due au fait qu'à chaque itération, le champ de contrôle produit par l'algorithme augmente la valeur d'une fonctionnelle (e. g. du type donné par l'équation (1.7)). Ces schémas sont à la base des travaux présentés dans cette thèse.

1.5 Schémas monotones

Les schémas monotones ont été introduits dans le cadre du contrôle quantique par D. Tannor (en s'appuyant sur des travaux V. F. Krotov) dans [27] et par W. Zhu et H. Rabitz dans [28] sous deux formes différentes. Dans une étude récente [29], Y. Maday et G. Turinici présentent une classe plus large de schémas monotones qui englobe les deux types d'algorithmes initiaux. Nous présentons ici une formulation abstraite des algorithmes monotones, qui présente l'avantage de simplifier les calculs et d'englober de nombreux cas de fonctionnelles. Nous appliquons à la section 1.6 ces calculs aux cas rencontrés dans le cadre du contrôle quantique.

1.5.1 Cadre

Considérons de nouveau la fonctionnelle J définie par (1.7) et l'équation d'évolution (1.6) que nous lui associons.

Les fonctions g , f sont à partir de maintenant supposées de classe C^2 et h de classe C^1 . Nous supposons de plus que les Hessiennes H_g et H_f respectivement associées à g et f sont définies positives, ce qui n'est pas restrictif dans le cadre de la chimie quantique⁴. Nous considérons enfin comme ensemble de contrôles admissibles des fonctions définies sur $[0, T]$, à valeurs réelles, telles que :

$$\int_0^T h(u(t))dt < +\infty,$$

et nous supposons l'opérateur A dérivable par rapport à la variable u .

⁴On se référera à la remarque du paragraphe 1.6.2.

1.5.2 Equations critiques, mutiplicateur de Lagrange

Dans la pratique, les algorithmes déterministes d'optimisation reposent sur la résolution des équations d'Euler-Lagrange de la fonctionnelle traitée. Pour déterminer ce système d'équations, nous introduisons un multiplicateur de Lagrange associé à la contrainte (1.6). La fonctionnelle devient :

$$\tilde{J}(u, X, Y) = g(X(T)) + \int_0^T f(X(t))dt + \int_0^T h(u(t))dt - \Re \int_0^T \langle Y(t) | \partial_t + A(u(t)) | X(t) \rangle dt,$$

soit encore, en notant A^* l'opérateur adjoint de A :

$$\begin{aligned} \tilde{J}(u, X, Y) = & g(X(T)) + \int_0^T f(X(t))dt + \int_0^T h(u(t))dt - \Re [\langle Y(t) | X(t) \rangle]_0^T \\ & + \Re \int_0^T \langle [\partial_t - A^*(u(t))] Y(t) | X(t) \rangle dt, \end{aligned} \quad (1.8)$$

formule qui nous est utile pour calculer la variation par rapport à X et à $X(T)$. Les équations d'Euler-Lagrange sont alors :

$$\begin{cases} \partial_t X + A(u)X = 0 \\ X(0) = X_0 \end{cases} \quad (1.9)$$

$$\begin{cases} \partial_t Y - A^*(u)Y = -\nabla f(X) \\ Y(t = T) = \nabla g(X(T)) \end{cases} \quad (1.10)$$

$$\Re \langle Y | \nabla A(u) | X \rangle = \nabla h(u).$$

1.5.3 Schémas d'optimisation

Calcul fondamental

Décrivons le calcul sur lequel repose tout schéma monotone. Soit u et u' deux contrôles. Notons respectivement X, X', Y, Y' les états et adjoints associés à ces champs par les équations d'Euler-Lagrange (1.9), (1.10). Considérons alors les développements

à l'ordre 2 suivants :

$$\begin{cases} f(X + \delta X) = f(X) + \Re(\nabla f(X) \cdot \delta X) + H_f(X)(\delta X, \delta X) + o(\delta X^2) \\ g(X + \delta X) = g(X) + \Re(\nabla g(X) \cdot \delta X) + H_g(X)(\delta X, \delta X) + o(\delta X^2). \end{cases}$$

Calculons la variation de la fonctionnelle J entre les deux champs u et u' :

$$\begin{aligned} J(u') - J(u) &= \Re(\nabla g(X(T)) \cdot \delta X(T)) + \int_0^T \Re(\nabla f(X(t)) \cdot \delta X(t)) dt \\ &\quad + \int_0^T h(u'(t)) - h(u(t)) \delta u(t) dt \\ &\quad + H_g(\delta X(T), \delta X(T)) + \int_0^T H_f(\delta X(t), \delta X(t)) dt \\ &\quad + o(\delta X^2) + o(\delta u^2), \end{aligned}$$

où $\delta X = X' - X$ et $\delta u = u' - u$. Les termes du second ordre sont positifs de par les hypothèses faites sur les Hessiennes H_f et H_g de f et g . Introduisons l'adjoint grâce aux relations d'Euler-Lagrange (1.10) :

$$\begin{aligned} J(u') - J(u) &= \Re\langle Y(T) | \delta X(T) \rangle - \Re \int_0^T \langle [\partial_t - A^*(u(t))] Y(t) | \delta X(t) \rangle dt \\ &\quad + \int_0^T h(u'(t)) - h(u(t)) dt + H_g(\delta X(T), \delta X(T)) + \int_0^T H_f(\delta X(t), \delta X(t)) dt \\ &\quad + o(\delta X^2). \end{aligned}$$

Une manipulation exactement inverse à celle débouchant sur (1.8) et qui avait permis de calculer la variation de \tilde{J} par rapport à X donne alors :

$$\begin{aligned} &\Re\langle Y(T) | \delta X(T) \rangle - \Re \int_0^T \langle [\partial_t - A^*(u(t))] Y | \delta X(t) \rangle dt \\ &= \Re \int_0^T \langle Y(t) | \partial_t + A(u(t)) | \delta X(t) \rangle dt. \end{aligned}$$

Utilisons enfin les relations :

$$\begin{aligned} \partial_t X &= -A(u)X, \\ \partial_t X' &= -A(u')X', \end{aligned}$$

qui donnent lieu à :

$$\int_0^T \Re \langle Y(t) | \partial_t + A(u(t)) | \delta X(t) \rangle dt = \int_0^T \Re \langle Y(t) | A(u(t)) - A(u'(t)) | X'(t) \rangle dt .$$

Finalemment :

$$\begin{aligned} J(u') - J(u) &= \int_0^T \Re \langle Y(t) | A(u(t)) - A(u'(t)) | X'(t) \rangle dt + \int_0^T h(u'(t)) - h(u(t)) dt \\ &\quad + H_g(\delta X(T), \delta X(T)) + \int_0^T H_f(\delta X(t), \delta X(t)) dt \\ &\quad + o(\delta X^2). \end{aligned} \tag{1.11}$$

Cette dernière formule marque un progrès important pour la conception de schémas itératifs d'optimisation : disposant d'un champ u^k , si une détermination u^{k+1} peut être effectuée de telle sorte que les termes du premier ordre de (1.11) soient positifs, alors la différence entre deux valeurs successives de la fonctionnelle est positive, à l'ordre 3 près. Nous abordons à la section 1.6 certains cas où ce choix peut être effectué explicitement.

Propagation spécifique de l'adjoint

La démarche précédente peut être raffinée en supposant que les adjoints sont calculés avec des champs intermédiaires \tilde{u} et \tilde{u}' . L'équation d'évolution de l'adjoint Y est alors :

$$\begin{cases} \partial_t Y - A^*(\tilde{u})Y &= -\nabla f(X) \\ Y(T) &= \nabla g(X(T)). \end{cases}$$

Un calcul analogue à celui aboutissant à (1.11) donne lieu à :

$$\begin{aligned} J(u') - J(u) &= \Re \int_0^T \langle Y(t) | A(\tilde{u}(t)) - A(u'(t)) | X'(t) \rangle dt \\ &\quad + \Re \int_0^T \langle Y(t) | A(u(t)) - A(\tilde{u}(t)) | X(t) \rangle dt + \int_0^T h(u'(t)) - h(u(t)) dt \\ &\quad + H_g(\delta X(T), \delta X(T)) + \int_0^T H_f(\delta X(t), \delta X(t)) dt \\ &\quad + o(\delta X^2) + o(\delta u^2). \end{aligned} \tag{1.12}$$

Structure d'un schéma général

Considérons le cas où l'adjoint est propagé avec un champ intermédiaire \tilde{u} et exposons les principales étapes d'un schéma monotone correspondant tel qu'il se dégage des calculs précédents. L'idée générale sur laquelle repose la méthode est d'assurer la positivité des termes du premier ordre dans les formules (1.11) et (1.12). Pour ce faire, un critère de positivité portant sur l'intégrande est imposé.

Supposons avoir déjà calculé u^k, X^k . L'algorithme consiste alors à effectuer les opérations suivantes :

1. Calculer simultanément \tilde{u}^k et Y^k sous les contraintes :

$$\left\{ \begin{array}{l} \partial_t Y^k - A^*(\tilde{u}^k)Y^k = -\nabla f(X^k) \\ Y^k(T) = \nabla g(X^k(T)) \\ \forall t \in [0, T], \Re\langle Y^k(t) | A(u^k(t)) - A(\tilde{u}^k(t)) | X^k(t) \rangle + h(\tilde{u}^k(t)) - h(u^k(t)) \geq 0, \end{array} \right.$$

2. Calculer simultanément u^{k+1} et X^{k+1} sous les contraintes :

$$\left\{ \begin{array}{l} \partial_t X^{k+1} + A(u^{k+1})X^{k+1} = 0 \\ X^{k+1}(0) = X_0 \\ \forall t \in [0, T], \Re\langle Y^k(t) | A(\tilde{u}^k(t)) - A(u^{k+1}(t)) | X^{k+1}(t) \rangle + h(u^{k+1}(t)) - h(\tilde{u}^k(t)) \geq 0. \end{array} \right.$$

La formule (1.12) montre alors que la réalisation de cet algorithme fait croître la fonctionnelle (1.7) de manière monotone. Notons que la propagation du vecteur Y^k est calculée de manière rétrograde, c'est-à-dire depuis T jusqu'à 0 puisque la condition initiale pour l'équation associée est donnée en T . La propagation de X^{k+1} est effectuée quant à elle dans le sens direct.

Aspect implicite des schémas monotones

Les formules précédentes donnent des critères pour déterminer itérativement une suite de champs. En effet, celles-ci permettent de calculer récursivement $u^k, u^{k+1} \dots$ ou $u^k, \tilde{u}^k, u^{k+1}, \tilde{u}^{k+1}, \dots$. Il est important de noter que ces critères sont implicites : qu'il

s'agisse de déterminer \tilde{u}^k à partir de u^k puis u^{k+1} à partir de \tilde{u}^k ou bien simplement u^{k+1} à partir de u^k , nous voyons que le champ courant et l'état qu'il propage doivent être déterminés simultanément. Au chapitre 2, nous montrons comment une discrétisation en temps adéquate permet de construire des schémas monotones explicites malgré cette apparente difficulté.

Une conséquence de cette remarque est que les algorithmes monotones ne peuvent être considérés comme des algorithmes de type gradient. La formule (1.11) donne en effet lieu à une formule d'optimisation du type :

$$u^{k+1} = u^k + \rho(\nabla h(u^k) - \Re\langle Y^k | \nabla A(u^k) | X^{k+1} \rangle),$$

alors qu'un algorithme de gradient prescrirait :

$$u^{k+1} = u^k + \rho(\nabla h(u^k) - \Re\langle Y^k | \nabla A(u^k) | X^k \rangle).$$

1.6 Schémas monotones en chimie quantique

1.6.1 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 :

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

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

1.6.2 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 $\mathbb{L}^2([0, T], \mathbb{R})$, $\psi : \Omega \times [0, T] \rightarrow \mathbb{C}$ 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 :

$$J_1(\varepsilon) = \langle \psi(T) | O | \psi(T) \rangle - \int_0^T \alpha(t) \varepsilon^2(t) dt, \quad (1.14)$$

$$J_2(\varepsilon) = 2\Re \langle \psi_{cible} | \psi(T) \rangle - \int_0^T \alpha(t) \varepsilon^2(t) dt. \quad (1.15)$$

L'optimisation de J_1 permet de réaliser un compromis entre la recherche d'une grande valeur de l'observable et une norme \mathbb{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 \mathcal{U} des contrôles admissibles, sur lequel est réalisé l'optimisation, est a priori $\mathbb{L}^2([0, T], \mathbb{R})$. 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 : Les opérateurs, tels que O , associés à des observables sont toujours supposés bornés sur $\mathbb{L}^2([0, T], \mathbb{R})$ 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, puisqu'une fonction d'onde est toujours de norme égale à 1 dans $\mathbb{L}^2(\Omega)$. 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 :

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

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

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

et pour J_2 par :

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

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

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

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 :

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

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].

1.6.3 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 :

$$\begin{aligned} J_1(\varepsilon^{k+1}) - J_1(\varepsilon^k) &= \int_0^T (\tilde{\varepsilon}^k(t) - \varepsilon^{k+1}(t))(2\Im\langle\chi^k(t)|\mu|\psi^{k+1}(t)\rangle + \alpha(t)(\tilde{\varepsilon}^k(t) + \varepsilon^{k+1}(t)))dt \\ &\quad + \int_0^T (\varepsilon^k(t) - \tilde{\varepsilon}^k(t))(2\Im\langle\chi^k(t)|\mu|\psi^k(t)\rangle + \alpha(t)(\varepsilon^k(t) + \tilde{\varepsilon}^k(t)))dt \\ &\quad + \langle\delta\psi^{k+1,k}(T)|O|\delta\psi^{k+1,k}(T)\rangle, \end{aligned} \tag{1.16}$$

$$\begin{aligned} J_2(\varepsilon^{k+1}) - J_2(\varepsilon^k) &= \int_0^T (\tilde{\varepsilon}^k(t) - \varepsilon^{k+1}(t))(2\Im\langle\chi^k(t)|\mu|\psi^{k+1}(t)\rangle + \alpha(t)(\tilde{\varepsilon}^k(t) + \varepsilon^{k+1}(t)))dt \\ &\quad + \int_0^T (\varepsilon^k(t) - \tilde{\varepsilon}^k(t))(2\Im\langle\chi^k(t)|\mu|\psi^k(t)\rangle + \alpha(t)(\varepsilon^k(t) + \tilde{\varepsilon}^k(t)))dt. \end{aligned} \tag{1.17}$$

Notons I_k la partie intégrale commune à ces deux formules.

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

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 :

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

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 :

$$I_k = \int_0^T \alpha(t) \left[\left(\varepsilon^{k+1}(t) + \frac{1}{\alpha(t)} \Im \langle \chi^k(t) | \mu | \psi^{k+1}(t) \rangle \right)^2 - \left(\tilde{\varepsilon}^k(t) + \frac{1}{\alpha(t)} \Im \langle \chi^k(t) | \mu | \psi^{k+1}(t) \rangle \right)^2 \right] dt \quad (1.18)$$

$$+ \int_0^T \alpha(t) \left[\left(\tilde{\varepsilon}^k(t) + \frac{1}{\alpha(t)} \Im \langle \chi^k(t) | \mu | \psi^k(t) \rangle \right)^2 - \left(\varepsilon^k(t) + \frac{1}{\alpha(t)} \Im \langle \chi^k(t) | \mu | \psi^k(t) \rangle \right)^2 \right] dt. \quad (1.19)$$

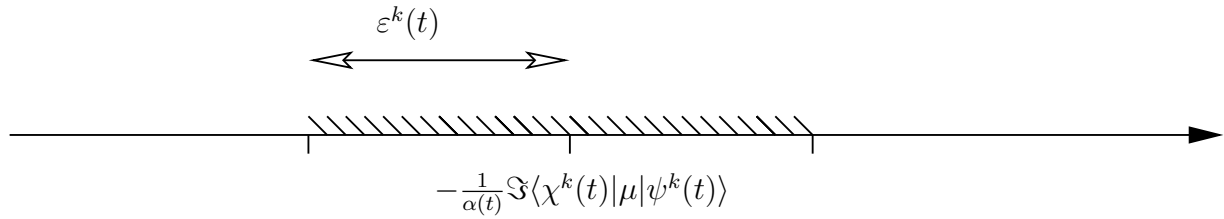


FIG. 1.2 – La zone hachurée représente l'ensemble des valeurs de $\tilde{\varepsilon}^k$ qui assurent la monotonie du schéma.

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

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

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

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

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 :

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

$$\text{sat}_M(x) = \begin{cases} -M & , x \geq -M \\ x & , -M \leq x \leq M \\ M & , x \geq M. \end{cases}$$

et posons alors :

$$\begin{cases} \tilde{\varepsilon}^k(t) & = M \text{sign}^+\left(-\frac{1}{\alpha(t)} \mathfrak{S}\langle \chi^k(t) | \mu | \psi^k(t) \rangle\right) \\ \varepsilon^{k+1}(t) & = M \text{sign}^+\left(-\frac{1}{\alpha(t)} \mathfrak{S}\langle \chi^k(t) | \mu | \psi^{k+1}(t) \rangle\right) \end{cases} \quad (1.20)$$

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

$$\begin{cases} \tilde{\varepsilon}^k(t) & = \text{sat}_M\left(-\frac{1}{\alpha(t)} \mathfrak{S}\langle \chi^k(t) | \mu | \psi^k(t) \rangle\right) \\ \varepsilon^{k+1}(t) & = \text{sat}_M\left(-\frac{1}{\alpha(t)} \mathfrak{S}\langle \chi^k(t) | \mu | \psi^{k+1}(t) \rangle\right) \end{cases} \quad (1.21)$$

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 $\tilde{\varepsilon}^k$ et ε^{k+1} :

$$\begin{aligned}
 \tilde{\varepsilon}^k(t) &= (1 - \eta)\varepsilon^k(t) - \frac{\eta}{\alpha(t)}\Im\langle\chi^k(t)|\mu|\psi^k(t)\rangle, \\
 \varepsilon^{k+1}(t) &= (1 - \delta)\tilde{\varepsilon}^k(t) - \frac{\delta}{\alpha(t)}\Im\langle\chi^k(t)|\mu|\psi^{k+1}(t)\rangle,
 \end{aligned}
 \tag{1.22}$$

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 :

$$\begin{aligned}
 J_1(\varepsilon^{k+1}) - J_1(\varepsilon^k) &= \langle\psi^{k+1}(T) - \psi^k(T)|O|\psi^{k+1}(T) - \psi^k(T)\rangle \\
 &\quad + \int_0^T \alpha(t)\left(\frac{2}{\delta} - 1\right)(\varepsilon^{k+1}(t) - \tilde{\varepsilon}^k(t))^2 dt \\
 &\quad + \int_0^T \alpha(t)\left(\frac{2}{\eta} - 1\right)(\tilde{\varepsilon}^k(t) - \varepsilon^k(t))^2 dt, \\
 J_2(\varepsilon^{k+1}) - J_2(\varepsilon^k) &= \int_0^T \alpha(t)\left(\frac{2}{\delta} - 1\right)(\varepsilon^{k+1}(t) - \tilde{\varepsilon}^k(t))^2 dt \\
 &\quad + \int_0^T \alpha(t)\left(\frac{2}{\eta} - 1\right)(\tilde{\varepsilon}^k(t) - \varepsilon^k(t))^2 dt.
 \end{aligned}$$

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 $(\delta, \eta) = (1, 1)$.

Monotonie imposée par une condition différentielle

Considérons de nouveau les termes intégraux communs aux deux formules (1.16) et (1.17) :

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

Remarquons que les choix $\tilde{\varepsilon}^k = \varepsilon^k$ et $\varepsilon^{k+1} = \tilde{\varepsilon}^k$ conduisent à un accroissement nul. L'idée est donc de chercher des grandeurs \tilde{h}^k et h^{k+1} de sorte que :

$$\left\{ \begin{array}{l} \tilde{\varepsilon}^k = \varepsilon^k + \tilde{h}^k \\ \varepsilon^{k+1} = \tilde{\varepsilon}^k + h^{k+1} \end{array} \right. ,$$

entraîne un accroissement positif. En pratique, cela revient à déterminer un signe et une valeur absolue. Notons que cette approche permet de concevoir des schémas monotones dans le cas où $\alpha = 0$. Nous reviendrons plus en détail sur cette approche au chapitre 2.

1.6.4 Convergence monotone

Nous avons signalé que les algorithmes monotones ne peuvent en aucun cas être considérés comme relevant de la classe des algorithmes de gradient. L'importante non linéarité des problèmes présentés dans cette thèse ne peut conférer à cette classe de méthodes aucune garantie théorique quant à la question de la convergence.

De ce point de vue, les algorithmes monotones présentent d'emblée l'avantage de faire nécessairement converger les valeurs de la fonctionnelle : nous verrons en effet que ces valeurs, en plus d'être monotones, sont bornées.

Au cours des premières itérations une convergence numérique très rapide des valeurs de la fonctionnelle est observée. Cette tendance se ralentit par la suite. Ces observations sont illustrées sur la figure 1.3. Cette dernière remarque conduit parfois à effectuer une optimisation en deux étapes : un certain nombre d'itérations sont calculées par un schéma monotone et, lorsque la convergence devient trop lente, une optimisation par un schéma de type gradient est mise en œuvre. Les observations montrent en effet une convergence beaucoup plus rapide de cette dernière méthode au voisinage d'un optimum.

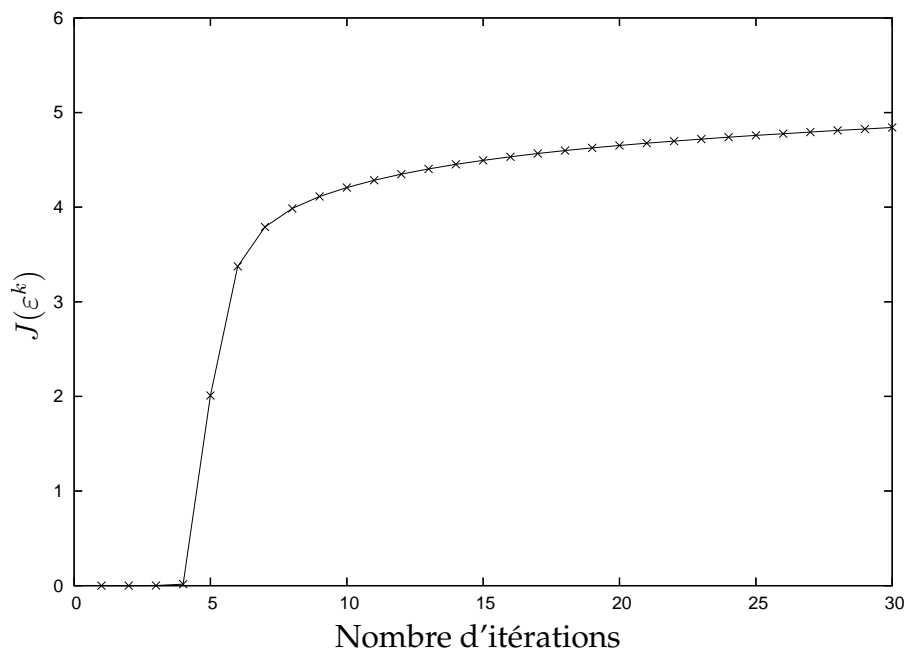


FIG. 1.3 – Evolution typique des valeurs de la fonctionnelle de coût au cours des itérations.

Chapitre 2

Discrétisation des schémas monotones

Résumé

Ce chapitre présente une classe de méthodes de discrétisation en temps qui préservent la propriété de monotonie des schémas monotones continus. Ces méthodes résolvent ainsi les problèmes d'instabilité rencontrés lors de la mise en œuvre formelle des schémas continus. Parmi ces méthodes, un schéma implicite est présenté. Bien que n'étant pas le plus efficace d'après les tests numériques, il reste du point de vue théorique très fiable puisqu'une borne pour les champs peut être calculée et que l'existence de solutions aux équations implicites à résoudre peut être assurée. Une stratégie de changement des paramètres de ce schéma au cours des itérations est également validée. Un schéma explicite est également présenté et s'avère numériquement le plus efficace. Sa complexité est de surcroît du même ordre que les schémas usuels. Enfin, une première méthode d'accélération des calculs est testée.

Une partie des résultats de ce chapitre est l'objet des publications [33, 34].

Sommaire

2.1	Introduction	38
2.2	Mise en œuvre des schémas monotones	39
2.2.1	Cadre de la discrétisation	39
2.2.2	Méthodes de calcul du contrôle discret	41

2.2.3	Instabilités	42
2.3	Discrétisation monotone des schémas généraux	43
2.3.1	Fonctionnelles et propagateurs discrets	43
2.3.2	Calcul de la variation	44
2.3.3	Contraintes assurant la monotonie	46
2.4	Schémas monotones discrets en chimie quantique	47
2.4.1	Calcul de la variation	49
2.4.2	Schémas implicites	51
2.4.3	Schémas explicites	59
2.5	Accélération du calcul par réduction du pas de temps	66
2.5.1	Introduction	66
2.5.2	Méthode	66
2.5.3	Résultats numériques	67
2.5.4	Discrétisation spatiale	68

2.1 Introduction

Nous avons vu que les schémas monotones font intervenir des équations aux dérivées partielles. Les preuves de monotonie exposées au chapitre 1 supposent toutes que ces équations soient résolues de manière exacte. Lors de la mise en œuvre numérique de ces schémas, une résolution exacte n'est bien entendu plus possible et la monotonie n'est donc plus assurée lors des simulations.

Nous présentons dans ce chapitre une étude des discrétisations possibles des équations d'Euler-Lagrange préservant la monotonie des valeurs des fonctionnelles discrétisées correspondantes. Nous continuons de noter T le temps de contrôle.

2.2 Mise en œuvre des schémas monotones

2.2.1 Cadre de la discrétisation

Rappels

Considérons de nouveau une fonctionnelle de la forme :

$$J(u) = g(X(T)) + \int_0^T f(X(t))dt + \int_0^T h(u(t))dt,$$

où f et g sont deux fonctions de classe C^2 , h est une fonction de classe C^1 et où X et u sont soumis à la contrainte :

$$\begin{cases} \partial_t X + A(u)X = 0, \\ X(0) = X_0. \end{cases} \quad (2.1)$$

Rappelons que l'introduction d'un multiplicateur de Lagrange Y , vérifiant l'équation d'évolution :

$$\begin{cases} \partial_t Y - A^*(u)Y = -\nabla f(X), \\ Y(T) = \nabla g(X(T)), \end{cases}$$

simplifie l'écriture des équations d'Euler-Lagrange associées à $J(u)$. Rappelons également l'algorithme général qui en découle, tel qu'exposé au chapitre 1 :

Les grandeurs u^k et X^k étant connues à tout temps,

1. Calculer simultanément \tilde{u}^k et Y^k sous les contraintes :

$$\begin{cases} \partial_t Y^k - A^*(\tilde{u}^k)Y^k = -\nabla f(X^k) \\ Y^k(T) = \nabla g(X^k(T)) \end{cases}$$

$$\forall t \in [0, T], \Re(Y^k(t)|A(u^k(t)) - A(\tilde{u}^k(t))|X^k(t)\rangle + h(\tilde{u}^k(t)) - h(u^k(t)) \geq 0, \quad (2.2)$$

2. Calculer simultanément u^{k+1} et X^{k+1} sous les contraintes :

$$\begin{cases} \partial_t X^{k+1} + A(u^{k+1})X^{k+1} = 0 \\ X^{k+1}(0) = X_0 \end{cases}$$

$$\forall t \in [0, T], \Re \langle Y^k(t) | A(\tilde{u}^k(t)) - A(u^{k+1}(t)) | X^{k+1}(t) \rangle + h(u^{k+1}(t)) - h(\tilde{u}^k(t)) \geq 0. \quad (2.3)$$

Chacune des deux étapes de l'algorithme consiste donc en un calcul de propagation par un contrôle lui-même calculé à l'aide de l'état propagé. Cette tâche nécessite donc d'être explicitée.

Paramètres de la discrétisation en temps

Nous présentons dans cette section les notations associées à la discrétisation de l'algorithme général. Soit N un entier positif et $\Delta T = \frac{T}{N}$. Considérons la suite des valeurs discrétisées $(X_j^{k+1})_{j=0 \dots N-1}$ correspondant à un pas de temps ΔT , calculée lors de l'étape k de l'algorithme. Les termes de cette suite doivent réaliser l'approximation suivante :

$$X_j^k \approx X^k(j\Delta T).$$

De la même manière, considérons la suite $(Y_j^k)_{j=0 \dots N-1}$ associée à l'adjoint, propagée approximativement avec le même pas de temps ΔT et réalisant l'approximation :

$$Y_j^k \approx Y^k(j\Delta T).$$

Ces valeurs sont définies par récurrence, c'est-à-dire que deux termes consécutifs de ces suites doivent vérifier :

$$X_{j+1}^k \approx e^{-\int_{j\Delta T}^{(j+1)\Delta T} A(u^k(s)) ds} X_j^k, \quad (2.4)$$

$$Y_{j+1}^k \approx e^{\int_{j\Delta T}^{(j+1)\Delta T} A^*(u^k(s)) ds} Y_j^k + \nabla f(X_{j+1}^k). \quad (2.5)$$

Dans la suite, les notations u_j^k et \tilde{u}_j^k représentent les approximations des valeurs moyennes des contrôles u^k et \tilde{u}^k sur l'intervalle $[j\Delta T, (j+1)\Delta T]$.

Découplage du calcul de la propagation et de l'optimisation

Présentons dans ses grandes lignes la structure du calcul réalisé en pratique pour appliquer l'algorithme. Pour ce faire, examinons par exemple comment l'étape 2 peut être discrétisée.

Supposons calculé X_j^{k+1} et cherchons à déterminer X_{j+1}^{k+1} . D'après la formule (2.4), la valeur u_j^{k+1} est nécessaire à ce moment du calcul. C'est ici qu'intervient la contrainte (2.3).

Pour que l'algorithme soit monotone, le choix de u_j^{k+1} doit en effet vérifier cette inégalité, où ne doit pas apparaître la quantité X_{j+1}^{k+1} qui n'est pas encore connue. Une fois celui-ci effectué, l'état X_{j+1}^{k+1} est calculé par (2.4). L'étape 2 s'effectue donc en alternant le calcul du contrôle de propagation et de la propagation proprement dite. Ce découplage est illustré sur la figure 2.1.

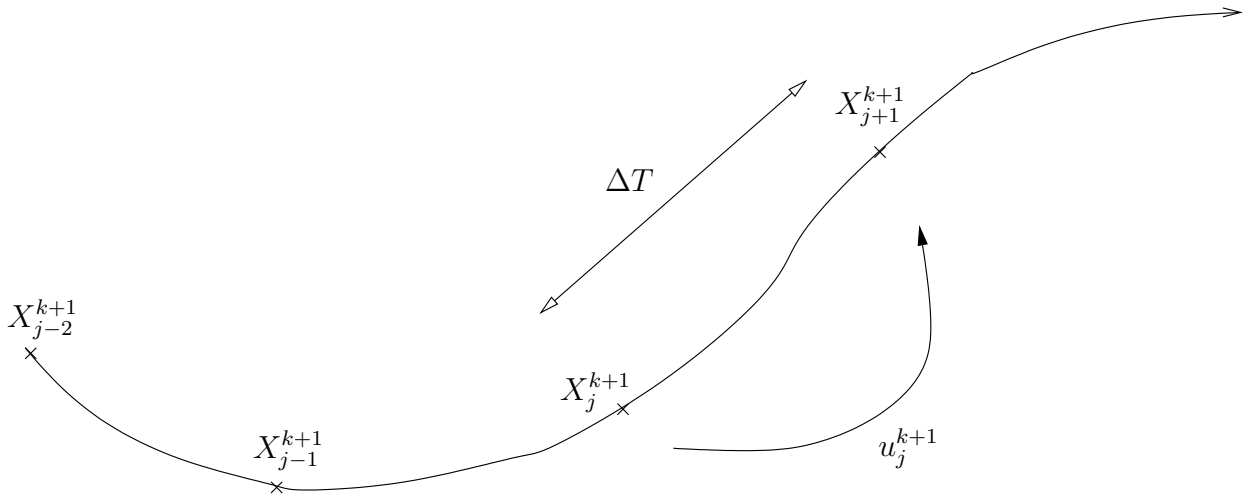


FIG. 2.1 – Le vecteur X_{j+1}^{k+1} est calculé à partir de X_j^{k+1} à l'aide de u_j^{k+1} .

Une démarche analogue est suivie pour l'étape 1 de l'algorithme général. Les deux différences majeures résident dans le fait que la propagation se fait de manière rétrograde et que l'équation de propagation contient un second membre. De même que pour l'étape 2, le calcul de la fonction propagée est alterné avec celui du contrôle.

2.2.2 Méthodes de calcul du contrôle discret

Dans cette section, nous expliquons les méthodes de calcul numérique des contrôles sur un exemple. De telles mises en œuvre sont à la base de plusieurs travaux sur les schémas monotones [28, 35]. La démarche suivie consiste de manière générale à discrétiser les contraintes (2.2) et (2.3). Considérons l'exemple précis du schéma monotone à

deux paramètres présenté à la section 1.6.3 du chapitre 1. En reprenant les notations du chapitre 1, rappelons⁵ que les mises à jours des champs suivantes :

$$\begin{aligned}\tilde{\varepsilon}^k(t) &= (1 - \eta)\varepsilon^k(t) - \frac{\eta}{\alpha(t)}\mathfrak{S}\langle\chi^k(t)|\mu|\psi^k(t)\rangle, \\ \varepsilon^{k+1}(t) &= (1 - \delta)\tilde{\varepsilon}^k(t) - \frac{\delta}{\alpha(t)}\mathfrak{S}\langle\chi^k(t)|\mu|\psi^{k+1}(t)\rangle.\end{aligned}$$

assurent (2.2) et (2.3). Une discrétisation simple de ces égalités est par exemple donnée par les équations suivantes :

$$\begin{aligned}\tilde{\varepsilon}_j^k &= (1 - \eta)\varepsilon_j^k - \frac{\eta}{\alpha_j}\mathfrak{S}\langle\chi_{j+1}^k|\mu|\psi_{j+1}^k\rangle, \\ \varepsilon_j^{k+1} &= (1 - \delta)\tilde{\varepsilon}_j^k - \frac{\delta}{\alpha_j}\mathfrak{S}\langle\chi_j^k|\mu|\psi_j^{k+1}\rangle.\end{aligned}$$

La limite de cette approche provient du fait que le champ a un sens sur tout l'intervalle $[j\Delta T, (j+1)\Delta T]$. C'est en effet par son intermédiaire qu'est propagé ψ_j^{k+1} jusqu'à ψ_{j+1}^{k+1} , comme l'illustre la formule (2.4) et la figure 2.1. Une démarche du premier ordre a donc été proposée [28]. Reposant sur le développement limité :

$$\varepsilon(t + \delta t) \approx \varepsilon(t) + \left(\frac{d}{dt}\varepsilon(t)\right)\delta t,$$

cette méthode permet de calculer des valeurs approchant plus précisément $\varepsilon(j\Delta T + \frac{\Delta T}{2})$ et $\tilde{\varepsilon}(j\Delta T - \frac{\Delta T}{2})$. Les formules sont alors les suivantes :

$$\tilde{\varepsilon}_j^k = (1 - \eta)\varepsilon_j^k - \frac{\eta}{\alpha_j}\mathfrak{S}\langle\chi_{j+1}^k|\frac{i\Delta T}{2}[\mu, H_0]|\psi_{j+1}^k\rangle, \quad (2.6)$$

$$\varepsilon_j^{k+1} = (1 - \delta)\tilde{\varepsilon}_j^k - \frac{\delta}{\alpha_j}\mathfrak{S}\langle\chi_j^k|\frac{i\Delta T}{2}[\mu, H_0]|\psi_j^{k+1}\rangle. \quad (2.7)$$

Notons que dans tous les cas, les schémas numériques résultants sont explicites puisqu'aucune des variables apparaissant dans les second membres des équations (2.6) et (2.7) ne dépend de $\tilde{\varepsilon}_j^k$ ou de ε_j^{k+1} . Ceci règle le problème des aspects implicites de l'algorithme général.

2.2.3 Instabilités

Les méthodes exposées à la section 2.2.2 conduisent à des instabilités lors de la mise en œuvre des calcul dans le cadre de problèmes de contrôle quantique. En fonction du

⁵On se référera à la section 1.6.3.

pas de temps utilisé, celles-ci apparaissent après un nombre variable d'itérations. La monotonie est affectée par ce phénomène. Dans la pratique, les chimistes travaillent avec le dernier champ obtenu avant que le schéma ne soit plus monotone. Il est à noter que cette démarche peut déjà conduire à des résultats satisfaisants lorsque les instabilités apparaissent en fin de convergence⁶, pendant la phase où les schémas monotones sont moins efficaces.

Une stabilisation du calcul peut néanmoins s'avérer nécessaire pour au moins trois raisons. Il existe des cas où la convergence numérique est souhaitable⁷, or, sauf à travailler avec de très petits pas de temps, les instabilités numériques surviennent généralement loin de la convergence. Dans tous les cas, on ne maîtrise pas le moment de leur apparition. Une stabilisation des schémas monotones permet également de travailler avec des pas de temps plus grands et donc de diminuer les temps de calculs. Enfin, les calculs développés dans les sections suivantes conduisent à une meilleure compréhension des schémas monotones ce qui permet de développer des stratégies d'accélération des calculs. Deux exemples de telles améliorations sont présentées à la section 2.5 et au chapitre 4.

2.3 Discrétisation monotone des schémas généraux

Les calculs précédents s'appuient tous sur les arguments exposés au chapitre 1 sur les modèles continus. Les contraintes sont calculées à partir des propagateurs exacts pour être ensuite discrétisées. Pour stabiliser les schémas monotones, nous allons reprendre ces calculs en amont, c'est-à-dire de prendre comme point de départ des fonctionnelles discrétisées et des propagateurs approchés.

2.3.1 Fonctionnelles et propagateurs discrets

Considérons la fonctionnelle de coût discrétisée suivante :

$$J_{\Delta T}(u) = g(X_N) + \Delta T \sum_{j=1}^N f(X_j) + \Delta T \sum_{j=0}^{N-1} h(u_j). \quad (2.8)$$

⁶C'est-à-dire lorsque la vitesse de convergence ralentit.

⁷De tels cas seront présentés au chapitre 3.

Pour reprendre le calcul, il nous faut aussi préciser la méthode de résolution des équations d'évolution rencontrées. Ceci n'avait pas été nécessaire dans les sections précédentes puisque la discrétisation était définie en aval du calcul continu. Ayant en vue le contrôle quantique, il apparaît nécessaire de choisir une méthode conservant les normes \mathbb{L}^2 des vecteurs propagés $X(t)$ et $Y(t)$ dans le cas où l'opérateur A est anti-hermitien. Les formules alors mises en œuvre sont les suivantes :

$$Y_{j+1} = e^{A^*(u_j)\Delta T} Y_j - \Delta T \nabla f(X_{j+1}), \quad Y_N = \nabla g(X_N). \quad (2.9)$$

$$X_{j+1} = e^{-A(u_j)\Delta T} X_j, \quad X_0 = X_{init} \quad (2.10)$$

2.3.2 Calcul de la variation

Considérons deux contrôles discrétisés $u = (u_j)_{j=0\dots N-1}$ et $u' = (u'_j)_{j=0\dots N-1}$ et les états $X = (X_j)_{j=0\dots N-1}$, $X' = (X'_j)_{j=0\dots N-1}$ et adjoints $Y = (Y_j)_{j=0\dots N-1}$, $Y' = (Y'_j)_{j=0\dots N-1}$ qui leurs sont associés par (2.9) et (2.10). Notons $\delta X = X' - X$ et écrivons les développements limités de g et f au voisinage respectivement de X_j et de X_N :

$$\begin{cases} f(X_j + \delta X_j) &= f(X_j) + \Re(\nabla f(X_j) \cdot \delta X_j) + Hf(X_j)(\delta X_j, \delta X_j) + o(\delta X_j^2) \\ g(X_N + \delta X_N) &= g(X_N) + \Re(\nabla g(X_N) \cdot \delta X_N) + Hg(X_N)(\delta X_N, \delta X_N) + o(\delta X_N^2). \end{cases}$$

L'accroissement de la fonctionnelle est alors :

$$\begin{aligned} J_{\Delta T}(u') - J_{\Delta T}(u) &= g(X'_N) - g(X_N) + \Delta T \sum_{j=1}^N f(X'_j) - f(X_j) \\ &\quad + \Delta T \sum_{j=0}^{N-1} h(u'_j) - h(u_j) \\ &= \Re(\nabla g(X_N) \cdot \delta X_N) + \Delta T \sum_{j=1}^N \Re(\nabla f(X_j) \cdot \delta X_j) \\ &\quad + \Delta T \sum_{j=0}^{N-1} h(u'_j) - h(u_j) \\ &\quad + Hg(\delta X_N, \delta X_N) + \Delta T \sum_{j=1}^N Hf(\delta X_j, \delta X_j) + o((\delta X_j)^2). \end{aligned}$$

Les deux derniers termes sont trivialement positifs. Intéressons-nous aux termes du premier ordre associés à δX en notant :

$$\Delta_1 J_{\Delta T}(\delta u) = \nabla g(X_N) \cdot \delta X_N + \Delta T \sum_{j=1}^N \nabla f(X_j) \cdot \delta X_j,$$

où $\delta u = u' - u$. De même que dans le cas continu, l'adjoint est alors introduit, grâce cette fois-ci à la formule de propagation discrète (2.9). Le calcul suivant correspond alors à une version discrète de celui effectué au chapitre 1 :

$$\begin{aligned}
 \Delta_1 J_{\Delta T}(\delta u) &= \nabla g(X_N) \cdot \delta X_N + \Delta T \sum_{j=1}^N \nabla f(X_j) \cdot \delta X_j \\
 &= \langle Y_N | X'_N - X_N \rangle - \sum_{j=1}^N \langle Y_j - e^{A^*(u_{j-1})\Delta T} Y_{j-1} | X'_j - X_j \rangle \\
 &= \langle Y_N | X'_N - X_N \rangle - \sum_{j=1}^N \langle Y_j | X'_j - X_j \rangle + \sum_{j=1}^N \langle e^{A^*(u_{j-1})\Delta T} Y_{j-1} | X'_j - X_j \rangle \\
 &= \langle Y_N | X'_N - X_N \rangle - \sum_{j=1}^N \langle Y_j | X'_j - X_j \rangle + \sum_{j=0}^{N-1} \langle e^{A^*(u_j)\Delta T} Y_j | X'_{j+1} - X_{j+1} \rangle \\
 &= - \sum_{j=1}^{N-1} \langle Y_j | X'_j - X_j \rangle + \sum_{j=0}^{N-1} \langle e^{A^*(u_j)\Delta T} Y_j | X'_{j+1} - X_{j+1} \rangle \\
 &= - \sum_{j=1}^{N-1} \langle Y_j | X'_j - X_j \rangle + \sum_{j=0}^{N-1} \langle Y_j | e^{A(u_j)\Delta T} X'_{j+1} - e^{A(u_j)\Delta T} X_{j+1} \rangle \\
 &= \sum_{j=0}^{N-1} \langle Y_j | e^{A(u_j)\Delta T} X'_{j+1} - X'_j - e^{A(u_j)\Delta T} X_{j+1} + X_j \rangle \\
 &= \sum_{j=0}^{N-1} \langle Y_j | e^{A(u_j)\Delta T} X'_{j+1} - X'_j \rangle \\
 &= \sum_{j=0}^{N-1} \langle Y_j | e^{A(u_j)\Delta T} e^{-A(u'_j)\Delta T} - Id | X'_j \rangle,
 \end{aligned}$$

où Id représente l'opérateur identité. Ces calculs établissent finalement la formule :

$$\begin{aligned}
 J_{\Delta T}(u') - J_{\Delta T}(u) &= \sum_{j=0}^{N-1} \Re \langle Y_j | e^{A(u_j)\Delta T} e^{-A(u'_j)\Delta T} - Id | X'_j \rangle + \Delta T (h(u'_j) - h(u_j)) \\
 &\quad + Hg(\delta X_N, \delta X_N) \\
 &\quad + \Delta T \sum_{j=0}^N Hf(\delta X_j, \delta X_j) + o(\delta X^2)
 \end{aligned} \tag{2.11}$$

Notons que ce calcul repose sur le choix d'une méthode numérique de résolution des équations d'évolution (2.1), (2.2). Les formules de propagation discrète (2.9) et (2.10) sont en effet utilisées à plusieurs reprises. Le principe du calcul reste néanmoins valable pour d'autres méthodes de résolution, dans le sens où son "ingrédient" essentiel est en

fait une intégration par partie discrète et non l'expression algébrique du propagateur discret en elle-même. Formellement, on peut montrer que si $\mathcal{P}_{A,u,j}$ et $\mathcal{P}_{A^*,u,j}$ représentent les propagateurs approchés associés à (2.4-2.5) tels que :

$$\begin{cases} X_{j+1} &= \mathcal{P}_{A,u,j} X_j \\ Y_{j+1} &= \mathcal{P}_{-A^*,u,j} Y_j - \Delta T \nabla f(X_{j+1}), \end{cases}$$

alors :

$$\begin{aligned} J_{\Delta T}(u') - J_{\Delta T}(u) &= \sum_{j=0}^{N-1} \Re \langle Y_j | \mathcal{P}_{A,u,j}^{-1} \mathcal{P}_{A,u',j} - Id | X'_j \rangle + \Delta T (h(u'_j) - h(u_j)) \\ &\quad + Hg(\delta X_N, \delta X_N) + \Delta T \sum_{j=0}^N Hf(\delta X_j, \delta X_j) + o(\delta X^2). \end{aligned}$$

Enfin, dans le cas où l'adjoint Y est propagé avec un contrôle $(\tilde{u}_j)_{j=0\dots N-1}$ distinct de $(u_j)_{j=0\dots N-1}$ suivant le schéma :

$$Y_{j+1} = e^{A^*(\tilde{u}_j)\Delta T} Y_j - \nabla f(X_{j+1}) \Delta T, \quad Y_N = \nabla g(X_N), \quad (2.12)$$

la formule (2.11) devient :

$$\begin{aligned} J_{\Delta T}(u') - J_{\Delta T}(u) &= \sum_{j=0}^{N-1} \Re \langle Y_{j+1} + \Delta T \nabla f(X_{j+1}) | e^{A(u_j)\Delta T} e^{-A(\tilde{u}_j)\Delta T} - Id | X'_{j+1} \rangle \\ &\quad + \Delta T (h(\tilde{u}_j) - h(u_j)) \\ &\quad + \sum_{j=0}^{N-1} \Re \langle Y_j | e^{A(\tilde{u}_j)\Delta T} e^{-A(u'_j)\Delta T} - Id | X'_j \rangle + \Delta T (h(u'_j) - h(\tilde{u}_j)) \\ &\quad + Hg(\delta X_N, \delta X_N) + \Delta T \sum_{j=0}^N Hf(\delta X_j, \delta X_j) + o(\delta X^2). \end{aligned} \quad (2.13)$$

2.3.3 Contraintes assurant la monotonie

La formule (2.13) permet de dégager des contraintes discrètes correspondant à (2.3) et (2.2) et assurant la monotonie d'un schéma. Nous résumons ceci dans le lemme suivant :

Lemme 2. *Supposons que les fonctions f et g apparaissant dans (2.8) soient polynomiales de degré au plus 2 par rapport à leur variable. Soit $(u_j^k)_{j=0\dots N-1}^{k \in \mathbb{N}}$ et $(\tilde{u}_j^k)_{j=0\dots N-1}^{k \in \mathbb{N}}$ deux suites de contrôles discrétisés vérifiant :*

$\forall j, 0 \leq j \leq N,$

$$\begin{aligned} \Re \langle Y_{j+1}^k + \Delta T \nabla f(X_{j+1}^k) | e^{A(u_j^k)\Delta T} e^{-A(\tilde{u}_j^k)\Delta T} - Id | X_{j+1}^k \rangle + \Delta T (h(\tilde{u}_j^k) - h(u_j^k)) &\geq 0, \\ \Re \langle Y_j^k | e^{A(\tilde{u}_j^k)\Delta T} e^{-A(u_j^{k+1})\Delta T} - Id | X_j^{k+1} \rangle + \Delta T (h(\tilde{u}_j^k) - h(u_j^{k+1})) &\geq 0. \end{aligned} \quad (2.14)$$

où $(X_j^k)_{j=0\dots N}^{k \in \mathbb{N}}$ et $(Y_j^k)_{j=0\dots N}^{k \in \mathbb{N}}$ désignent les états et adjoints respectivement associés à $(u_j^k)_{j=0\dots N-1}^{k \in \mathbb{N}}$, $(\tilde{u}_j^k)_{j=0\dots N-1}^{k \in \mathbb{N}}$ par (2.10) et (2.12). Alors cette suite entraîne une convergence monotone de la fonctionnelle $J_{\Delta T}$ définie par (2.8), c'est-à-dire :

$$\forall k \in \mathbb{N}, J_{\Delta T}(u^{k+1}) - J_{\Delta T}(u^k) \geq 0.$$

Nous obtenons ainsi un critère permettant l'élaboration de schémas monotones discrets. Notons que dans les conditions (2.14), aucune des variables ne dépend de \tilde{u}_j^k et u_j^{k+1} , à part elles mêmes. Ces formules peuvent donc être utilisées directement pour tester les champs en cours de calcul⁸.

2.4 Schémas monotones discrets en chimie quantique

Appliquons les calculs précédents aux problèmes de contrôle quantique présentés à la section 1.6 du chapitre 1. Les fonctionnelles à considérer dans ce cadre sont :

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

ou

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

Rappelons que l'opérateur O est défini positif et que ψ_{cible} représente une fonction de $\mathbb{L}^2(\Omega, \mathbb{C})$ de norme 1, où Ω est l'espace des configurations. Rappelons également que les équations d'Euler-Lagrange associées à ces fonctionnelles sont dans le cas de J_1 :

⁸C'est d'ailleurs pour cette raison que la première des deux inégalités de (2.14) est exprimée au temps $(j+1)\Delta T$: le champ \tilde{u}_j^k devant permettre de calculer Y_j^k , cette variable ne doit pas apparaître dans le critère.

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

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

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

et dans le cas de J_2 :

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

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

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

où :

- $\psi(x, t)$ est la fonction d'onde du système contrôlé,
- H est l'Hamiltonien interne associé au système,
- $\mu(x)$ est le moment dipolaire, caractéristique lui aussi du système traité. L'opérateur μ est donc une fonction de $\mathbb{L}^2(\Omega, \mathbb{R})$ que nous identifions avec l'opérateur associé : $\psi \mapsto \mu\psi$,
- $\varepsilon(t)$ est le terme de contrôle, soit, dans les cas qui nous intéressent, un champ électrique.

Sans perdre beaucoup de généralité au regard des différentes applications traitées par le contrôle quantique, supposons que l'Hamiltonien s'écrit sous la forme usuelle :

$$H = H_0 + V(x),$$

où H_0 est l'opérateur $-\Delta$, opposé du Laplacien et $V(x)$ est le potentiel électrostatique interne. Nous présentons plus précisément différents modèles et les paramètres qui leurs sont associés au chapitre 3.

De même qu'à la section 2.3, notons $(\psi_j)_{j=0\dots N}$, $(\chi_j)_{j=0\dots N}$, $(\varepsilon_j)_{j=0\dots N-1}$, $(\tilde{\varepsilon}_j)_{j=0\dots N-1}$ et $(\alpha_j)_{j=0\dots N-1}$ les différentes grandeurs discrétisées à un pas de temps ΔT . Les discrétisations des deux fonctionnelles conduisent à l'introduction de :

$$J_{\Delta T,1}(\varepsilon) = \langle \psi(T) | O | \psi(T) \rangle - \Delta T \sum_{j=0}^{N-1} \alpha_j \varepsilon_j^2, \quad (2.15)$$

$$J_{\Delta T,2}(\varepsilon) = 2\Re \langle \psi_{cible} | \psi(T) \rangle - \Delta T \sum_{j=0}^{N-1} \alpha_j \varepsilon_j^2. \quad (2.16)$$

Les propagations sont effectuées suivant les formules de splitting d'opérateur présentées au chapitre 1 :

$$\chi_j(x) = e^{iH_0 \frac{\Delta T}{2}} e^{i(V(x) - \mu(x)\tilde{\varepsilon}_j)\Delta T} e^{iH_0 \frac{\Delta T}{2}} \chi_{j+1}(x), \quad (2.17)$$

avec la condition $\chi_N = O\psi_N$ dans le cas de $J_{\Delta T,1}$ et $\chi_N = \psi_{cible}$ dans le cas de $J_{\Delta T,2}$ et

$$\psi_{j+1}(x) = e^{-iH_0 \frac{\Delta T}{2}} e^{-i(V(x) - \mu(x)\varepsilon_j)\Delta T} e^{-iH_0 \frac{\Delta T}{2}} \psi_j(x), \quad (2.18)$$

avec un état initial ψ_0 fixé.

2.4.1 Calcul de la variation

Les résultats de la section 2.3 peuvent être appliqués aux deux fonctionnelles $J_{\Delta T,1}$ et $J_{\Delta T,2}$. Quelques précautions sont nécessaires puisque les formules de splitting (2.17) et (2.18) ne sont pas tout à fait les mêmes que (2.9) et (2.10) puisque les opérateurs rencontrés dans le cadre de l'équation Schrödinger ne commutent pas. Cette restriction n'est cependant pas contraignante et il suffit d'effectuer formellement les remplacements suivants :

$$\begin{aligned} e^{A^*(\tilde{u}_j^k)\Delta T} &\leftarrow e^{iH_0 \frac{\Delta T}{2}} e^{i(V(x) - \mu\tilde{\varepsilon}_j^k)\Delta T} e^{iH_0 \frac{\Delta T}{2}}, \\ e^{-A(u_j^{k+1})\Delta T} &\leftarrow e^{-iH_0 \frac{\Delta T}{2}} e^{-i(V(x) - \mu\varepsilon_j^{k+1})\Delta T} e^{-iH_0 \frac{\Delta T}{2}}, \end{aligned}$$

dans les formules (2.14). De plus, comme au chapitre 1, l'adjoint des fonctionnelles (2.15) et (2.16) diffère d'un facteur $\frac{1}{2}$ de l'adjoint des sections précédentes. Les correspondances suivantes s'appliquent :

$$\begin{aligned} & \Re \langle Y_{j+1}^k + \Delta T \nabla f(X_{j+1}^k) | e^{A(u_j^k) \Delta T} e^{-A(\tilde{u}_j^k) \Delta T} - Id | X_{j+1}^k \rangle \\ &= 2 \Re \langle \chi_{j+1}^k | e^{-iH_0 \frac{\Delta T}{2}} e^{-i\mu(\varepsilon_j^k - \tilde{\varepsilon}_j^k) \Delta T} e^{iH_0 \frac{\Delta T}{2}} - Id | \psi_{j+1}^k \rangle, \\ & \Re \langle Y_j^k | e^{A(\tilde{u}_j^k) \Delta T} e^{-A(u_j^{k+1}) \Delta T} - Id | X_j^{k+1} \rangle \\ &= 2 \Re \langle \chi_j^k | e^{iH_0 \frac{\Delta T}{2}} e^{-i\mu(\tilde{\varepsilon}_j^k - \varepsilon_j^{k+1}) \Delta T} e^{-iH_0 \frac{\Delta T}{2}} - Id | \psi_j^{k+1} \rangle. \end{aligned}$$

Posons alors :

$$\widehat{\psi}_m^l = e^{-iH_0 \frac{\Delta T}{2}} \psi_m^l, \check{\psi}_m^l = e^{iH_0 \frac{\Delta T}{2}} \psi_m^l, \widehat{\chi}_m^l = e^{-iH_0 \frac{\Delta T}{2}} \chi_m^l, \check{\chi}_m^l = e^{iH_0 \frac{\Delta T}{2}} \chi_m^l, \quad (2.19)$$

pour finalement obtenir une version du lemme 2 adaptée au contrôle quantique :

Lemme 3. Soit $(\varepsilon_j^k)_{j=0 \dots N-1}^{k \in \mathbb{N}}$ et $(\tilde{\varepsilon}_j^k)_{j=0 \dots N-1}^{k \in \mathbb{N}}$ deux suites de champs discrets vérifiant :

$$\forall j, \quad 0 \leq j \leq N,$$

$$2 \Re \langle \check{\chi}_{j+1}^k | e^{-i\mu(\varepsilon_j^k - \tilde{\varepsilon}_j^k) \Delta T} - Id | \check{\psi}_{j+1}^k \rangle - \alpha_j \Delta T ((\tilde{\varepsilon}_j^k)^2 - (\varepsilon_j^k)^2) \geq 0, \quad (C_d)$$

$$2 \Re \langle \widehat{\chi}_j^k | e^{i\mu(\varepsilon_j^{k+1} - \tilde{\varepsilon}_j^k) \Delta T} - Id | \widehat{\psi}_j^{k+1} \rangle - \alpha_j \Delta T ((\varepsilon_j^{k+1})^2 - (\tilde{\varepsilon}_j^k)^2) \geq 0,$$

où $(\check{\chi}_j^k)_{j=0 \dots N}^{k \in \mathbb{N}}$, $(\widehat{\chi}_j^k)_{j=0 \dots N}^{k \in \mathbb{N}}$ désignent les adjoints associés à $(\tilde{\varepsilon}_j^k)_{j=0 \dots N-1}^{k \in \mathbb{N}}$ par (2.19) et (2.17) et $(\widehat{\psi}_j^k)_{j=0 \dots N}^{k \in \mathbb{N}}$, $(\check{\psi}_j^k)_{j=0 \dots N}^{k \in \mathbb{N}}$ désignent les états associés à $(\varepsilon_j^k)_{j=0 \dots N-1}^{k \in \mathbb{N}}$ par (2.19) et (2.18). Alors ces suites entraînent une convergence monotone des fonctionnelles $J_{\Delta T,1}$ et $J_{\Delta T,2}$ définies par (2.15) et (2.16), c'est-à-dire :

$$\forall n \in \{1, 2\}, \quad \forall k \in \mathbb{N}, \quad J_{n, \Delta T}(\varepsilon^{k+1}) - J_{n, \Delta T}(\varepsilon^k) \geq 0.$$

Nous pouvons alors concevoir des schémas monotones discrets en suivant les idées présentées au chapitre 1. Nous traduisons en termes discrets dans les sections suivantes les schémas à deux paramètres et les schémas de monotonie imposée par une condition différentielle.

2.4.2 Schémas implicites

Dans cette section nous nous inspirons de l'approche proposée à la section 1.6.3 du chapitre 1.

Pour se rapprocher du calcul continu, écrivons tout d'abord :

$$\Re\langle \check{\chi}_{j+1}^k | e^{-i\mu(\varepsilon_j^k - \tilde{\varepsilon}_j^k)\Delta T} - Id | \check{\psi}_{j+1}^k \rangle = (\varepsilon_j^k - \tilde{\varepsilon}_j^k)\Delta T \Im\langle \check{\chi}_{j+1}^k | \mu^*(\varepsilon_j^k - \tilde{\varepsilon}_j^k) | \check{\psi}_{j+1}^k \rangle,$$

et

$$\Re\langle \widehat{\chi}_j^k | e^{-i\mu(\varepsilon_j^{k+1} - \tilde{\varepsilon}_j^k)\Delta T} - Id | \widehat{\psi}_j^{k+1} \rangle = (\varepsilon_j^{k+1} - \tilde{\varepsilon}_j^k)\Delta T \Im\langle \widehat{\chi}_j^k | \mu^*(\varepsilon_j^{k+1} - \tilde{\varepsilon}_j^k) | \widehat{\psi}_j^{k+1} \rangle,$$

avec :

$$\mu^* : h \mapsto \frac{e^{-i\mu h\Delta T} - Id}{-ih\Delta T}, \quad (2.20)$$

qui appartient donc à $\mathcal{C}(\mathbb{R}, \mathbb{L}^2(\Omega, \mathbb{R}))$. Un résultat analogue à celui du chapitre 1 peut alors être énoncé.

Théorème 2. Soit $(\delta, \eta) \in [0, 2]^2$. Supposons que les suites $(\tilde{\varepsilon}_j^k)_{j=0\dots N-1}^{k \in \mathbb{N}}$ et $(\varepsilon_j^k)_{j=0\dots N-1}^{k \in \mathbb{N}}$ vérifient :

$$\begin{aligned} \forall j, 0 \leq j \leq N, \forall k \in \mathbb{N}, \\ \tilde{\varepsilon}_j^k &= (1 - \eta)\varepsilon_j^k - \frac{\eta}{\alpha_j} \Im\langle \check{\chi}_{j+1}^k | \mu^*(\varepsilon_j^k - \tilde{\varepsilon}_j^k) | \check{\psi}_{j+1}^k \rangle, \\ \varepsilon_j^{k+1} &= (1 - \delta)\tilde{\varepsilon}_j^k - \frac{\delta}{\alpha_j} \Im\langle \widehat{\chi}_j^k | \mu^*(\varepsilon_j^{k+1} - \tilde{\varepsilon}_j^k) | \widehat{\psi}_j^{k+1} \rangle, \end{aligned} \quad (2.21)$$

alors ces suites entraînent une convergence monotone des fonctionnelles $J_{\Delta T, 1}$ et $J_{\Delta T, 2}$, dans le sens où :

$$\forall n \in \{1, 2\}, \forall k \in \mathbb{N}, J_{n, \Delta T}(\varepsilon^{k+1}) - J_{n, \Delta T}(\varepsilon^k) \geq 0.$$

Preuve : Grâce aux formules (2.21), nous obtenons les égalités suivantes :

$$\begin{aligned} 2\Re\langle \check{\chi}_{j+1}^k | e^{-i\mu(\varepsilon_j^k - \tilde{\varepsilon}_j^k)\Delta T} - Id | \check{\psi}_{j+1}^k \rangle - \alpha_j \Delta T ((\tilde{\varepsilon}_j^k)^2 - (\varepsilon_j^k)^2) &= \Delta T \alpha_j \left(\frac{2}{\eta} - 1\right) (\tilde{\varepsilon}_j^k - \varepsilon_j^k)^2, \\ 2\Re\langle \widehat{\chi}_j^k | e^{i\mu(\varepsilon_j^{k+1} - \tilde{\varepsilon}_j^k)\Delta T} - Id | \widehat{\psi}_j^{k+1} \rangle - \alpha_j \Delta T ((\varepsilon_j^{k+1})^2 - (\tilde{\varepsilon}_j^k)^2) &= \Delta T \alpha_j \left(\frac{2}{\delta} - 1\right) (\varepsilon_j^{k+1} - \tilde{\varepsilon}_j^k)^2. \end{aligned}$$

Les inéquations (C_d) sont donc vérifiées et le théorème est alors démontré d'après le lemme 3. De même que dans le cas continu, un calcul analogue au précédent prouve que le résultat reste valable dans le cas où $\delta = 0$ ou $\eta = 0$. ■

Algorithme

Sur la base du théorème 2, nous pouvons alors proposer l'algorithme suivant, en conservant la notation μ^* définie en (2.20). Soit $(\delta, \eta) \in [0, 2]^2$.

• Etant donné $(\psi_j^k)_{j=0\dots N}$ et $(\check{\psi}_j^k)_{j=0\dots N}$ et donc $\chi_N^k = O\psi_N^k$ ou $\chi_N^k = \psi_{cible}$ selon que la fonctionnelle considérée soit $J_{\Delta T,1}$ ou $J_{\Delta T,2}$, calculer récursivement χ_j^k à partir de χ_{j+1}^k par les opérations suivantes :

1. Calcul de $\check{\chi}_{j+1}^k$ par :

$$\check{\chi}_{j+1}^k = e^{iH_0 \frac{\Delta T}{2}} \chi_{j+1}^k,$$

2. Calcul de $\tilde{\varepsilon}_j^k$ par résolution de :

$$\tilde{\varepsilon}_j^k = (1 - \eta)\varepsilon_j^k - \frac{\eta}{\alpha_j} \mathfrak{S}\langle \check{\chi}_{j+1}^k | \mu^*(\varepsilon_j^k - \tilde{\varepsilon}_j^k) | \check{\psi}_{j+1}^k \rangle, \quad (2.22)$$

3. Calcul et sauvegarde de $\hat{\chi}_j^k$ par :

$$\hat{\chi}_j^k = e^{i(V - \mu\tilde{\varepsilon}_j^k)\Delta T} \check{\chi}_{j+1}^k,$$

4. Calcul de χ_j^k par :

$$\chi_j^k = e^{iH_0 \frac{\Delta T}{2}} \hat{\chi}_j^k.$$

• Calculer récursivement ψ_{j+1}^{k+1} à partir de ψ_j^k par les deux calculs suivants :

1. Calcul de $\hat{\psi}_j^{k+1}$ par :

$$\hat{\psi}_j^{k+1} = e^{-iH_0 \frac{\Delta T}{2}} \psi_j^k,$$

2. Calcul de ε_j^{k+1} par résolution de :

$$\varepsilon_j^{k+1} = (1 - \delta)\tilde{\varepsilon}_j^k - \frac{\delta}{\alpha_j} \mathfrak{S}\langle \hat{\chi}_j^k | \mu^*(\varepsilon_j^{k+1} - \tilde{\varepsilon}_j^k) | \hat{\psi}_j^{k+1} \rangle, \quad (2.23)$$

3. Calcul et sauvegarde de $\check{\psi}_{j+1}^{k+1}$ par :

$$\check{\psi}_{j+1}^{k+1} = e^{-i(V - \mu\varepsilon_j^{k+1})\Delta T} \hat{\psi}_j^{k+1},$$

4. Calcul de ψ_{j+1}^k par :

$$\psi_{j+1}^{k+1} = e^{-iH_0 \frac{\Delta T}{2}} \check{\psi}_{j+1}^{k+1}.$$

Cet algorithme appelle plusieurs commentaires. Les différences avec les codes employés usuellement se situent dans les calculs de champs effectués aux étapes 2 et dans les sauvegardes des étapes 3.

Comme le montrent les équations (2.6) et (2.7), les codes habituels sauvegardent $(\chi_j^k)_{j=0\dots N}$ et $(\psi_j^k)_{j=0\dots N}$ pour calculer les champs et sont donc aussi coûteux du point de vue stockage en mémoire. Notons par contre que les équations (2.22) et (2.23) des étapes 2 sont implicites par rapport aux valeurs recherchées. Par conséquent, ces étapes sont potentiellement plus coûteuses en temps de calcul. Il nous faut de plus nous assurer de l'existence de solutions et chercher des méthodes pour les résoudre. Ces problèmes sont traités dans les sections suivantes. Les théorèmes qui suivent s'appliquent aux schémas monotones implicites liés à $J_{\Delta T,2}$. Nous signalons les modifications à apporter dans le cas de $J_{\Delta T,1}$.

Existence de solutions

Les équations (2.22) et (2.23) doivent permettre de définir respectivement $\tilde{\varepsilon}_j^k$ et ε_j^{k+1} . Pour dégager des conditions d'existence de solutions à ces équations, montrons tout d'abord que si elles existent, ces solutions sont nécessairement bornées. Notons $\|\mu\|_*$ la norme d'opérateur de μ et α_- le réel, supposé strictement positif, défini par :

$$\alpha_- = \inf_{j=0\dots N-1} \{\alpha_j\}.$$

Nous supposons à partir de maintenant que $\delta \neq 2$ et $\eta \neq 2$.

Théorème 3. *Supposons que les équations (2.22) et (2.23) admettent pour solutions $\tilde{\varepsilon}_j^k$ et ε_j^{k+1} . Alors il existe un réel positif M , ne dépendant que de δ , η , $\|\mu\|_*$ et $\|O\|_*$, tel que :*

$$\forall k \in \mathbb{N}, \quad \forall j, \quad 0 \leq j \leq N-1, \quad |\tilde{\varepsilon}_j^k| \leq M, \quad |\varepsilon_j^{k+1}| \leq M.$$

Preuve : Définissons M par :

$$M = \max(\|(\tilde{\varepsilon}_j^0)_{j=0\dots N-1}\|_\infty, \max(1, \frac{\delta}{2-\delta}, \frac{\eta}{2-\eta}) \frac{\|O\|_* \|\mu\|_*}{\alpha_-}), \quad (2.24)$$

et montrons par récurrence le résultat. Supposons la majoration suivante vraie au rang k :

$$|\tilde{\varepsilon}_j^k| \leq M.$$

La définition (2.23) entraîne :

$$|\varepsilon_j^{k+1}| \leq |1 - \delta|M + \left| \frac{\delta}{\alpha_j} \Im \langle \widehat{\chi}_j^k | \mu^*(\varepsilon_j^{k+1} - \tilde{\varepsilon}_j^k) | \widehat{\psi}_j^{k+1} \rangle \right|,$$

et l'inégalité des accroissements finis donne d'autre part :

$$\|\mu^*(\varepsilon_j^{k+1} - \tilde{\varepsilon}_j^k)\| = \left\| \frac{e^{-i\mu(\varepsilon_j^{k+1} - \tilde{\varepsilon}_j^k)\Delta T} - Id}{-i(\varepsilon_j^{k+1} - \tilde{\varepsilon}_j^k)\Delta T} \right\| \leq \|\mu\|_*.$$

De cette dernière inégalité nous déduisons $\|\mu^*\|_\infty \leq \|\mu\|_*$. Puisque les normes des différentes fonctions sont conservées au cours de la propagation, nous avons de plus :

$$\|\widehat{\psi}_j^{k+1}\| = 1,$$

$$\|\widehat{\chi}_j^k\| = \|\chi_N^k\| = \|O\psi_N^{k-1}\| \leq \|O\|_*,$$

qui permet d'obtenir, d'après l'inégalité de Cauchy-Schwartz :

$$|\varepsilon_j^{k+1}| \leq |1 - \delta|M + \delta \frac{\|O\|_* \|\mu\|_*}{\alpha_-}.$$

Si $\delta \leq 1$, alors $|1 - \delta| = 1 - \delta$ et puisque $\frac{\|O\|_* \|\mu\|_*}{\alpha_-} \leq M$:

$$|\varepsilon_j^{k+1}| \leq (1 - \delta)M + \delta M = M.$$

Si $\delta \geq 1$, alors $|1 - \delta| = \delta - 1$ et puisque $\frac{\delta}{2-\delta} \frac{\|O\|_* \|\mu\|_*}{\alpha_-} \leq M$:

$$|\varepsilon_j^{k+1}| \leq (\delta - 1)M + (2 - \delta)M = M.$$

Partant de cette majoration sur les termes de la suite $(\varepsilon_j^{k+1})_{j=0 \dots N-1}$, un raisonnement analogue permet de déduire :

$$\forall j, 0 \leq j \leq N, |\tilde{\varepsilon}_j^{k+1}| \leq M,$$

ce qui achève la démonstration par récurrence. ■

Dans le cas des schémas monotones implicites liés à $J_{\Delta T,1}$, un théorème analogue peut être démontré avec comme borne :

$$M = \max(\|(\tilde{\varepsilon}_j^0)_{j=0\dots N-1}\|_\infty, \max(1, \frac{\delta}{2-\delta}, \frac{\eta}{2-\eta}) \frac{\|\mu\|_*}{\alpha_-}).$$

Partant de ce résultat, nous pouvons démontrer l'existence de (2.22) et (2.23).

Théorème 4. *Supposons que les opérateurs μ et O soient bornés, alors il existe une solution $(\varepsilon_j^{k+1}, \tilde{\varepsilon}_j^{k+1})$ à (2.22) et (2.23).*

Preuve : Soit M , le réel défini par (2.24). Etant donné $(\tilde{\varepsilon}_j^k)_{j=0\dots N-1}$ bornée par M , la preuve du théorème 3 montre que l'image de l'intervalle $[-M, M]$ par la fonction f , définie par :

$$f : x \mapsto (1 - \delta)\tilde{\varepsilon}_j^k + \frac{\delta}{\alpha_j} \mathfrak{S}(\chi_j^k | \mu^*(x - \tilde{\varepsilon}_j^k) | \widehat{\psi}_j^{k+1}), \quad (2.25)$$

est contenue dans $[-M, M]$. La fonction f étant continue, le théorème des valeurs intermédiaires permet alors de conclure à l'existence d'un point fixe pour cette fonction et donc d'une solution à (2.23). Un raisonnement analogue peut être mené pour prouver l'existence d'une solution à (2.22). Ceci achève la preuve par récurrence. ■

Le schéma exposé en 2.4.2 est donc bien défini et produit des champs bornés par le réel M . Un théorème identique peut bien entendu être montré dans le cas de $J_{\Delta T,1}$.

Unicité et itérations de Picard

Continuons de noter M le réel défini dans (2.24). Pour résoudre (2.22) et (2.23) une méthode de Picard peut être employée. Le théorème suivant en donne les conditions de convergence.

Théorème 5. *Soit $(\tilde{\varepsilon}_j^k)_{j=0\dots N-1}$ une solution de (2.22). Si :*

$$\frac{\delta}{\alpha_-} \|O\|_* \|\mu\|_*^2 \Delta T < 1, \quad (2.26)$$

alors la solution de (2.23) est unique et est la limite de la suite $(u_n)_n$ définie par :

$$\begin{cases} u_0 \in [-M, M] \\ u_{n+1} = f(u_n), \end{cases}$$

où f est la fonction définie à l'équation (2.25).

Preuve : Pour alléger les notations dans les calculs qui suivent, μ désigne dans cette preuve aussi bien la fonction précédemment définie sur Ω que son évaluation $\mu(x)$ en un point quelconque de Ω .

Soit h la fonction continue définie par :

$$h(\theta) = \begin{cases} i & \text{si } \theta = 0 \\ \frac{e^{i\theta} - 1}{\theta} & \text{si } \theta \neq 0. \end{cases}$$

Avec cette définition μ^* défini en (2.20) vérifie :

$$\mu^*(x - \tilde{\varepsilon}_j^k) = -i\mu h(\mu(x - \tilde{\varepsilon}_j^k)\Delta T).$$

Notons de plus que pour tout réel θ , $h'(\theta) \leq 1$.

Puisque $\frac{d\mu^*(x - \tilde{\varepsilon}_j^k)}{dx} = -i\mu^2 \Delta T h'(\mu(x - \tilde{\varepsilon}_j^k)\Delta T)$, l'inégalité des accroissements finis donne :

$$|\mu^*(x - \tilde{\varepsilon}_j^k) - \mu^*(y - \tilde{\varepsilon}_j^k)| \leq \|\mu\|_*^2 \Delta T |x - y|,$$

ce qui conduit à :

$$|f(x) - f(y)| \leq \frac{\delta}{\alpha_-} \|O\|_* \|\mu\|_*^2 \Delta T |x - y|,$$

et donne la conclusion annoncée. ■

Un résultat analogue peut bien entendu être obtenu pour l'existence de solution à (2.22) sous la condition :

$$\frac{\eta}{\alpha_-} \|O\|_* \|\mu\|_*^2 \Delta T < 1. \quad (2.27)$$

Dans le cas de $J_{\Delta T, 1}$, les conditions (2.26) et (2.27) deviennent :

$$\frac{\delta}{\alpha_-} \|\mu\|_*^2 \Delta T < 1 \text{ et } \frac{\eta}{\alpha_-} \|\mu\|_*^2 \Delta T < 1.$$

Nous déduisons de cette manière une condition suffisante d'unicité des solutions des équations (2.22) et (2.23) et une méthode de résolution.

Méthode de Newton

Considérons que les conditions (2.26) et (2.27) sont vérifiées. Plutôt que de considérer des itérations sur la fonction f définie par (2.25), la méthode de Newton prescrit de

calculer des itérations sur la fonction g définie par :

$$g(x) = x - \frac{f(x) - x}{f'(x) - 1}.$$

Si x_0 est solution de cette dernière et x un réel quelconque, il existe une valeur c_x comprise entre x et x_0 telle que :

$$g(x) - g(x_0) = g''(c_x) \frac{(x - x_0)^2}{2}.$$

Une estimation grossière de $g''(c_x)$ peut être faite à partir de la continuité de g'' . Nous pouvons par exemple approcher $g''(c_x)$ par $g''(x_0)$. Un calcul permet d'obtenir :

$$|g''(x_0)| \leq \frac{\frac{\delta}{\alpha_-} \|O\|_* \|\mu\|_*^3 \Delta T^2}{1 - \frac{\delta}{\alpha_-} \|O\|_* \|\mu\|_*^2 \Delta T}. \quad (2.28)$$

Notons que le dénominateur de cette fonction n'est pas nul lorsque la condition du théorème 5 est vérifiée. La majoration (2.28) peut être utilisée pour estimer la vitesse de convergence de la méthode de Newton.

L'estimation (2.28) devient dans le calcul de $\tilde{\varepsilon}$:

$$|g''(x_0)| \leq \frac{\frac{\eta}{\alpha_-} \|O\|_* \|\mu\|_*^3 \Delta T^2}{1 - \frac{\eta}{\alpha_-} \|O\|_* \|\mu\|_*^2 \Delta T}. \quad (2.29)$$

Dans le cas de $J_{\Delta T,1}$, (2.28) et (2.29) deviennent :

$$|g''(x_0)| \leq \frac{\frac{\delta}{\alpha_-} \|\mu\|_*^3 \Delta T^2}{1 - \frac{\delta}{\alpha_-} \|\mu\|_*^2 \Delta T} \text{ et } |g''(x_0)| \leq \frac{\frac{\eta}{\alpha_-} \|\mu\|_*^3 \Delta T^2}{1 - \frac{\eta}{\alpha_-} \|\mu\|_*^2 \Delta T}.$$

Variation des paramètres de pénalisation

Nous présentons dans cette section les résultats de tests visant à déterminer l'influence du couple de paramètres (δ, η) sur la convergence du schéma. La preuve du théorème 2 permet de montrer que la monotonie subsiste lorsque les paramètres δ et η varient au cours des itérations⁹. Nous avons testé plusieurs couples de valeurs et montrer numériquement la pertinence de certains choix. La fonctionnelle testée est $J_{\Delta T,2}$. La méthode de Newton présentée à la section 2.4.2 a été utilisée pour les petits pas de temps et un algorithme de dichotomie s'est avéré nécessaire à partir d'un certain seuil. Les résultats sont résumés par la figure 2.2.

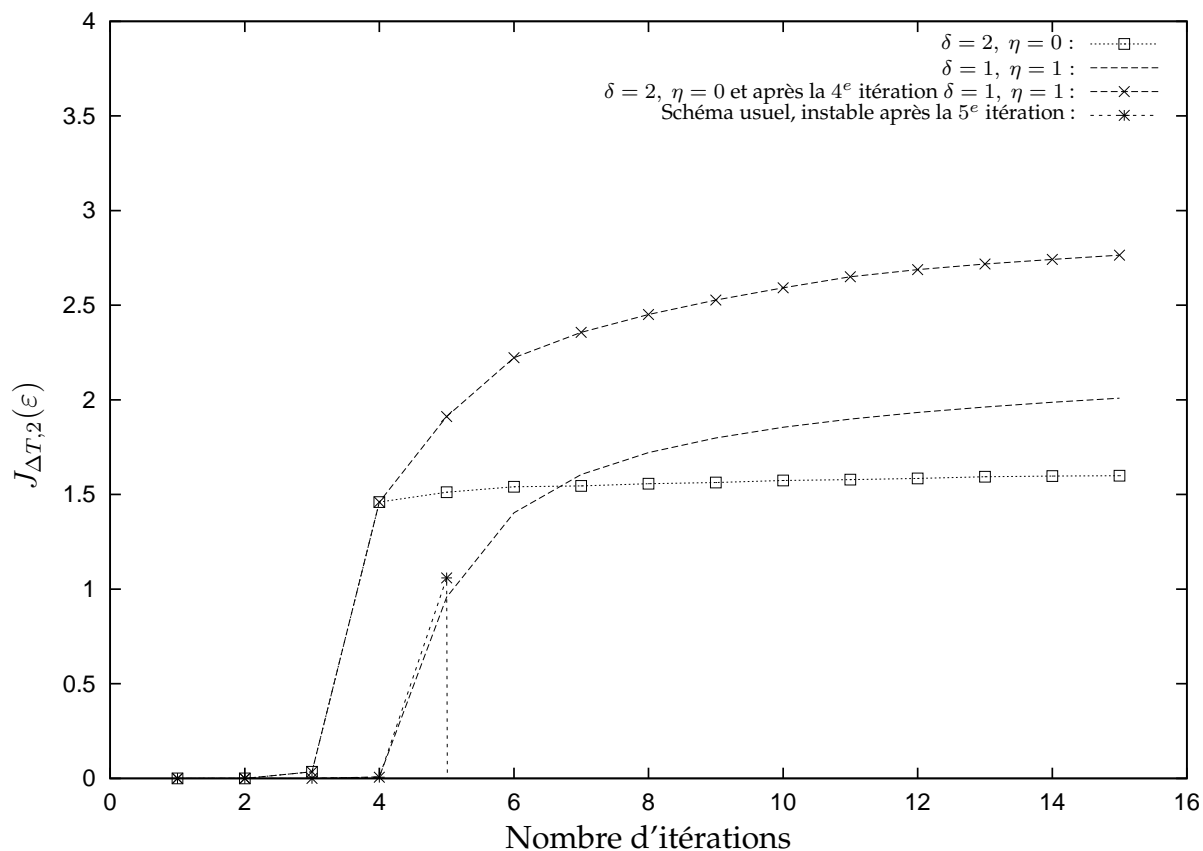


FIG. 2.2 – Les instabilités numériques qui affectaient les schémas monotones usuels masquaient la pertinence du choix $\delta = 1, \eta = 1$ qui ne se révèle qu’après la 6^e itération. Le changement de paramètre $(\delta, \eta) = (2, 0) \rightarrow (1, 1)$ à la 4^e itération s’avère très efficace.

Le modèle sur lequel ont été effectués ces tests est exposé plus en détail à la section 3.2 du chapitre 3. Les résultats montrent que le cas $(\delta, \eta) = (2, 0)$ est moins efficace que $(\delta, \eta) = (1, 1)$ même si la convergence est initialement plus rapide. Partant de cette constatation, nous avons testé un changement de paramètre :

$$(\delta, \eta) = (2, 0) \rightarrow (\delta, \eta) = (1, 1)$$

qui s’est avéré efficace. Dans un travail récent [35], des expériences numériques menées à l’aide d’un algorithme monotone analogue à ceux présentés à la section 2.2.2 montrent

⁹Ce théorème peut d’ailleurs aussi être étendu aux cas où les paramètres δ et η varient au cours de la propagation.

qu'une telle stratégie peut s'avérer efficace pour éviter la stagnation de la fonctionnelle à une valeur trop faible, ce qui vient confirmer nos observations.

2.4.3 Schémas explicites

Des schémas explicites peuvent également être dégagés à partir des critères établis à la section 2.4.1. Rappelons que les champs doivent être calculés de telle sorte que les équations (C_d) du lemme 3 soient vérifiées.

Monotonie imposée par une condition différentielle

La méthode explicite décrite ci-dessous présente l'avantage par rapport au schéma implicite d'être plus simple à mettre en œuvre. Elle diminue en outre le coût de calcul. Reprenons la démarche exposée au chapitre 1 sur l'exemple du calcul de $\tilde{\varepsilon}_j^k$ à partir de ε_j^k . Le terme de gauche de l'inéquation (C_d), qui nous guide dans notre détermination de $\tilde{\varepsilon}_j^k$, est nul pour le choix $\tilde{\varepsilon}_j^{k+1} = \tilde{\varepsilon}_j^k$. Considérons alors les fonctions $l_{\varepsilon^k, j}$:

$$\tilde{l}_{\varepsilon^k, j} : x \mapsto 2\Re\langle \tilde{\chi}_{j+1}^k | e^{-i\mu(-x)\Delta T} - Id | \tilde{\psi}_{j+1}^k \rangle - \alpha_j \Delta T x (x + 2\varepsilon_j^k),$$

et $l_{\tilde{\varepsilon}^k, j}$:

$$l_{\tilde{\varepsilon}^k, j} : x \mapsto 2\Re\langle \tilde{\chi}_j^k | e^{-i\mu x \Delta T} - Id | \widehat{\psi}_j^{k+1} \rangle - \alpha_j \Delta T x (x + 2\tilde{\varepsilon}_j^k).$$

puisque $\tilde{l}_{\varepsilon^k, j}(0) = 0$ et $l_{\tilde{\varepsilon}^k, j}(0) = 0$, l'idée sur laquelle nous nous appuyons dans cette section est de chercher localement des valeurs \tilde{h}_j^k et h_j^k telles que $\tilde{l}_{\varepsilon^k, j}(\tilde{h}_j^k) > 0$ et $l_{\tilde{\varepsilon}^k, j}(h_j^k) > 0$. Par la suite, nous aurons besoin des dérivées des fonctions $\tilde{l}_{\varepsilon^k, j}$ et $l_{\tilde{\varepsilon}^k, j}$. Donnons les expressions de leurs deux premières dérivées :

$$\tilde{l}'_{\varepsilon^k, j} : x \mapsto 2\Im\langle \tilde{\chi}_{j+1}^k | \mu \Delta T e^{-i\mu(-x)\Delta T} | \tilde{\psi}_{j+1}^k \rangle - 2\alpha_j \Delta T (x + \varepsilon_j^k),$$

$$\tilde{l}''_{\varepsilon^k, j} : x \mapsto -2\Re\langle \tilde{\chi}_{j+1}^k | \mu^2 \Delta T^2 e^{-i\mu(-x)\Delta T} | \tilde{\psi}_{j+1}^k \rangle - 2\alpha_j \Delta T,$$

$$l'_{\tilde{\varepsilon}^k, j} : x \mapsto 2\Im\langle \widehat{\chi}_j^k | \mu \Delta T e^{-i\mu x \Delta T} | \widehat{\psi}_j^{k+1} \rangle - 2\alpha_j \Delta T (x + \tilde{\varepsilon}_j^k),$$

$$l''_{\tilde{\varepsilon}^k, j} : x \mapsto -2\Re\langle \widehat{\chi}_j^k | \mu^2 \Delta T^2 e^{-i\mu x \Delta T} | \widehat{\psi}_j^{k+1} \rangle - 2\alpha_j \Delta T.$$

Méthode du premier ordre

Les fonctions $\tilde{l}_{\varepsilon^k, j}$ et $l_{\tilde{\varepsilon}^k, j}$ permettent de déterminer des valeurs convenables de \tilde{h}_j^k et h_j^{k+1} . Le schéma obtenu est alors le suivant :

Soit $(h_j^*)_{j=1\dots N-1}$ une suite arbitraire de réels positifs.

• Etant donné $(\psi_j^k)_j$ et $(\check{\psi}_j^k)_j$ et donc $\chi_N^k = O\psi_N^k$ ou $\chi_N^k = \psi_{cible}$ selon que la fonctionnelle considérée soit $J_{\Delta T, 1}$ ou $J_{\Delta T, 2}$, calculer récursivement χ_j^k à partir de χ_{j+1}^k selon les étapes suivantes :

1. Calcul de $\tilde{\chi}_{j+1}^k$ par :

$$\tilde{\chi}_{j+1}^k = e^{iH_0 \frac{\Delta T}{2}} \chi_{j+1}^k,$$

2. Calcul de \tilde{s}_j^k par :

$$\tilde{s}_j^k = \text{sign}(\tilde{l}_j^k(0)),$$

3. Calcul de $\tilde{\varepsilon}_j^k$ par :

(a) Assignation $\tilde{h}_j^k = \tilde{s}_j^k h_j^*$,

(b) Assignation $\tilde{\varepsilon}_j^k = \varepsilon_j^k + \tilde{h}_j^k$,

(c) Si $\tilde{l}_{\varepsilon^k, j}(\tilde{h}_j^k) < 0$, assignation $\tilde{h}_j^k = \frac{\tilde{h}_j^k}{2}$ et retour à la sous-étape 3b,

4. Calcul et sauvegarde de $\hat{\chi}_j^k$ par :

$$\hat{\chi}_j^k = e^{i(V - \mu \tilde{\varepsilon}_j^k) \Delta T} \tilde{\chi}_{j+1}^k,$$

5. Calcul de χ_j^k par :

$$\chi_j^k = e^{iH_0 \frac{\Delta T}{2}} \hat{\chi}_j^k.$$

• Calculer récursivement ψ_{j+1}^{k+1} à partir de ψ_j^k selon les étapes suivantes :

1. Calcul de $\hat{\psi}_j^{k+1}$ par :

$$\hat{\psi}_j^{k+1} = e^{-iH_0 \frac{\Delta T}{2}} \psi_j^k,$$

2. Calcul de s_j^{k+1} par :

$$s_j^{k+1} = \text{sign}(l_j^{k+1}(0)),$$

3. Calcul de ε_j^{k+1} par :

(a) Assignment $h_j^{k+1} = s_j^{k+1} h_j^*$,

(b) Assignment $\varepsilon_j^{k+1} = \tilde{\varepsilon}_j^k + h_j^{k+1}$,

(c) Si $l_{\tilde{\varepsilon}^k, j}(h_j^{k+1}) < 0$, assignment $h_j^{k+1} = \frac{h_j^{k+1}}{2}$ et retour à la sous-étape 3b,

4. Calcul et sauvegarde de $\check{\psi}_{j+1}^{k+1}$ par :

$$\check{\psi}_{j+1}^{k+1} = e^{-i(V - \mu\varepsilon_j^{k+1})\Delta T} \widehat{\psi}_j^{k+1},$$

5. Calcul de ψ_{j+1}^k par :

$$\psi_{j+1}^{k+1} = e^{-iH_0 \frac{\Delta T}{2}} \check{\psi}_{j+1}^{k+1},$$

où *sign* est la fonction à valeurs dans $\{-1, 1\}$ qui renvoie le signe de sa variable.

Ce schéma conduit nécessairement à un accroissement des valeurs de la fonctionnelle, puisque pour \tilde{h}_j^k et h_j^{k+1} suffisamment petits, $\tilde{l}_{\varepsilon^k, j}(\tilde{h}_j^k) \geq 0$ et $l_{\tilde{\varepsilon}^k, j}(h_j^{k+1}) \geq 0$.

Méthode du second ordre

Suivant une démarche analogue à la précédente, nous pouvons diminuer la complexité du calcul en choisissant pour valeurs de $\tilde{\varepsilon}_j^k$ et de ε_j^{k+1} des maxima locaux de $\tilde{l}_{\varepsilon^k, j}$ et de $l_{\tilde{\varepsilon}^k, j}$ dans des voisinages de ε_j^k et de $\tilde{\varepsilon}_j^k$. Ces maxima sont calculés approximativement par une itération de la méthode de Newton appliquée à $\tilde{l}_{\varepsilon^k, j}$ et $l_{\tilde{\varepsilon}^k, j}$. L'algorithme qui découle de cette démarche est le suivant :

• Etant donné $(\psi_j^k)_{j=0\dots N}$ et $(\check{\psi}_j^k)_{j=0\dots N}$, calculer récursivement χ_j^k à partir de χ_{j+1}^k selon les étapes suivantes :

1. Calcul de $\check{\chi}_{j+1}^k$ par :

$$\check{\chi}_{j+1}^k = e^{iH_0 \frac{\Delta T}{2}} \chi_{j+1}^k,$$

2. Calcul de $\tilde{\varepsilon}_j^k$ par :

$$\tilde{\varepsilon}_j^k = \varepsilon_j^k - \frac{\tilde{l}'_{\varepsilon^k, j}(0)}{\tilde{l}''_{\varepsilon^k, j}(0)},$$

3. Calcul et sauvegarde de $\widehat{\chi}_j^k$ par :

$$\widehat{\chi}_j^k = e^{i(V - \mu \widehat{\varepsilon}_j^k) \Delta T} \check{\chi}_{j+1}^k,$$

4. Calcul de χ_j^k par :

$$\chi_j^k = e^{iH_0 \frac{\Delta T}{2}} \widehat{\chi}_j^k.$$

• Calculer récursivement ψ_{j+1}^{k+1} à partir de ψ_j^k selon les étapes suivantes :

1. Calcul de $\widehat{\psi}_j^{k+1}$ par :

$$\widehat{\psi}_j^{k+1} = e^{-iH_0 \frac{\Delta T}{2}} \psi_j^k,$$

2. Calcul de ε_j^{k+1} par :

$$\varepsilon_j^{k+1} = \check{\varepsilon}_j^k - \frac{l'_{\check{\varepsilon}^k, j}(0)}{l''_{\check{\varepsilon}^k, j}(0)},$$

3. Calcul et sauvegarde de $\check{\psi}_{j+1}^{k+1}$ par :

$$\check{\psi}_{j+1}^{k+1} = e^{-i(V - \mu \varepsilon_j^{k+1}) \Delta T} \widehat{\psi}_j^{k+1},$$

4. Calcul de ψ_{j+1}^{k+1} par :

$$\psi_{j+1}^{k+1} = e^{-iH_0 \frac{\Delta T}{2}} \check{\psi}_{j+1}^{k+1}.$$

Cet algorithme ne conduit pas nécessairement à un algorithme monotone puisque les contraintes imposées par le lemme 3 ne sont pas forcément vérifiées. Elles le sont cependant lorsque les coefficients α_j sont suffisamment grands. En effet une interprétation des sous-étapes 2 est de considérer que $\check{\varepsilon}_j^k$ et ε_j^k sont comme les maxima des développements limités d'ordre 2 des fonctions $l_{\check{\varepsilon}^k, j}$ et $\check{l}_{\varepsilon^k, j}$. Lorsque les coefficients $(\alpha_j)_{j=0 \dots N-1}$ sont grands ces polynômes sont alors des fonctions concaves et admettent bien un maximum positif.

Dans les différentes applications traitées au chapitre 3, les contraintes du lemme 3 n'ont d'autre part jamais été violées par ce schéma.

Schémas explicites et schéma à deux paramètres

Les schémas explicites que nous venons de définir peuvent être vus comme des schémas monotones à deux paramètres dont les paramètres sont adaptés au cours de la propagation. Ceci peut par exemple être vérifié dans le cas du schéma explicite du second

ordre. La mise à jour du champ ε^k est en effet effectuée par la formule :

$$\begin{aligned}\tilde{\varepsilon}_j^k &= \varepsilon_j^k - \frac{\tilde{V}'_{\varepsilon^k,j}(0)}{\tilde{V}''_{\varepsilon^k,j}(0)} \\ &= (1 - \eta_j^k)\varepsilon_j^k - \frac{\eta_j^k}{\alpha_j} \mathfrak{S}\langle \tilde{\chi}_{j+1}^k | \mu | \tilde{\psi}_{j+1}^k \rangle,\end{aligned}\tag{2.30}$$

où :

$$\eta_j^k = \frac{\alpha_j}{\Delta T \Re\langle \tilde{\chi}_{j+1}^k | \mu^2 | \tilde{\psi}_{j+1}^k \rangle + \alpha_j}.$$

Une différence est à noter entre les discrétisations (2.23) et (2.30) de μ . Dans (2.23), il est fait appel à une fonction μ^* auxiliaire pour réaliser l'approximation alors que dans (2.30) c'est la fonction originale μ qui est utilisée.

Caractère local des algorithmes

Les deux schémas explicites s'apparentent à des méthodes de gradient et de Newton. Pour autant, cette identification ne peut se faire que "localement". L'optimisation des champs est en effet réalisée pas à pas puisque ces deux méthodes construisent les suites $(\tilde{\varepsilon}_j^k)_{j=0\dots N-1}$ et $(\varepsilon_j^{k+1})_{j=0\dots N-1}$ itérativement par rapport au paramètre j . Il n'est par conséquent pas certain que la méthode du second ordre soit optimale globalement alors qu'elle l'est localement au second ordre près. Nous reviendrons sur cette remarque au chapitre 4.

Résultats numériques

Le schéma du premier ordre pose une difficulté : la suite $(h_j^*)_{j=0\dots N-1}$ y apparaît comme arbitraire. Une suite constante peut conduire à une convergence trop lente ou à des champs dépourvus de contenu physique. Inspirés par l'équation d'Euler-Lagrange des fonctionnelles $J_{\Delta T,1}$ et $J_{\Delta T,2}$ portant sur le champ :

$$\alpha(t)\varepsilon(t) = -\mathfrak{S}\langle \chi(t) | \mu | \psi(t) \rangle,$$

nous avons testé le schéma explicite du premier ordre avec $h_j^* = |\frac{1}{\alpha_j} \mathfrak{S}\langle \tilde{\chi}_{j+1}^k | \mu | \tilde{\psi}_{j+1}^k \rangle|$ au cours de la propagation de l'adjoint et $h_j^* = |\frac{1}{\alpha_j} \mathfrak{S}\langle \tilde{\chi}_j^k | \mu | \tilde{\psi}_j^k \rangle|$ au cours de la propagation de l'état. Cette approche s'est révélée fructueuse puisque les tests ont donné des résultats comparables à la méthode implicite.

Mais c'est la méthode du second ordre qui s'est avérée la plus efficace, puisque les valeurs de la fonctionnelle obtenues pour un même nombre d'itérations sont meilleures. La figure 2.3 représente l'évolution de fonctionnelle $J_{\Delta T,2}$ par les schémas explicites et implicite.

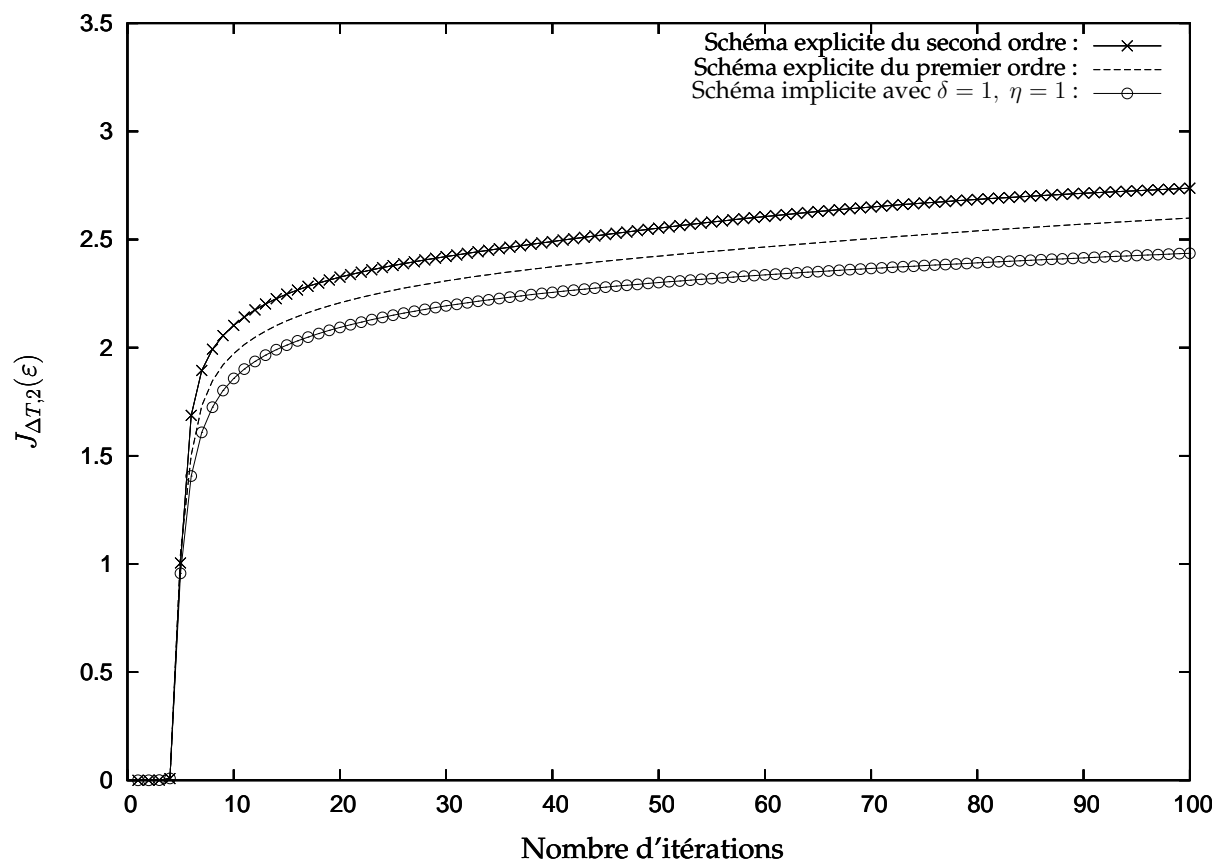


FIG. 2.3 – Evolution des valeurs de la fonctionnelle de coût lors par algorithmes implicite ($\delta = 1, \eta = 1$) et explicites.

Coût du calcul

D'après les résultats numériques, la méthode la plus efficace parmi les schémas précédents est le schéma explicite du second ordre. Nous pouvons évaluer le surcoût de cette méthode par rapport aux schémas habituellement employés. Sur une itération, deux calculs supplémentaires sont à prendre en considération : il s'agit des évaluations de $\tilde{l}''_{\epsilon^k,j}(0)$ et de $l''_{\tilde{\epsilon}^k,j}(0)$. Les calculs de $\tilde{l}'_{\epsilon^k,j}(0)$ et de $l'_{\tilde{\epsilon}^k,j}(0)$ ne doivent pas entrer en compte

dans notre comparaison, puisque des évaluations analogues sont présentes dans les algorithmes usuels. La figure 2.4 représente le temps de calcul de l'algorithme associé aux équations (2.6) et (2.7) et de l'algorithme explicite en fonction du nombre d'itérations. La comparaison des coûts de calcul du schéma explicite du second ordre et des schémas

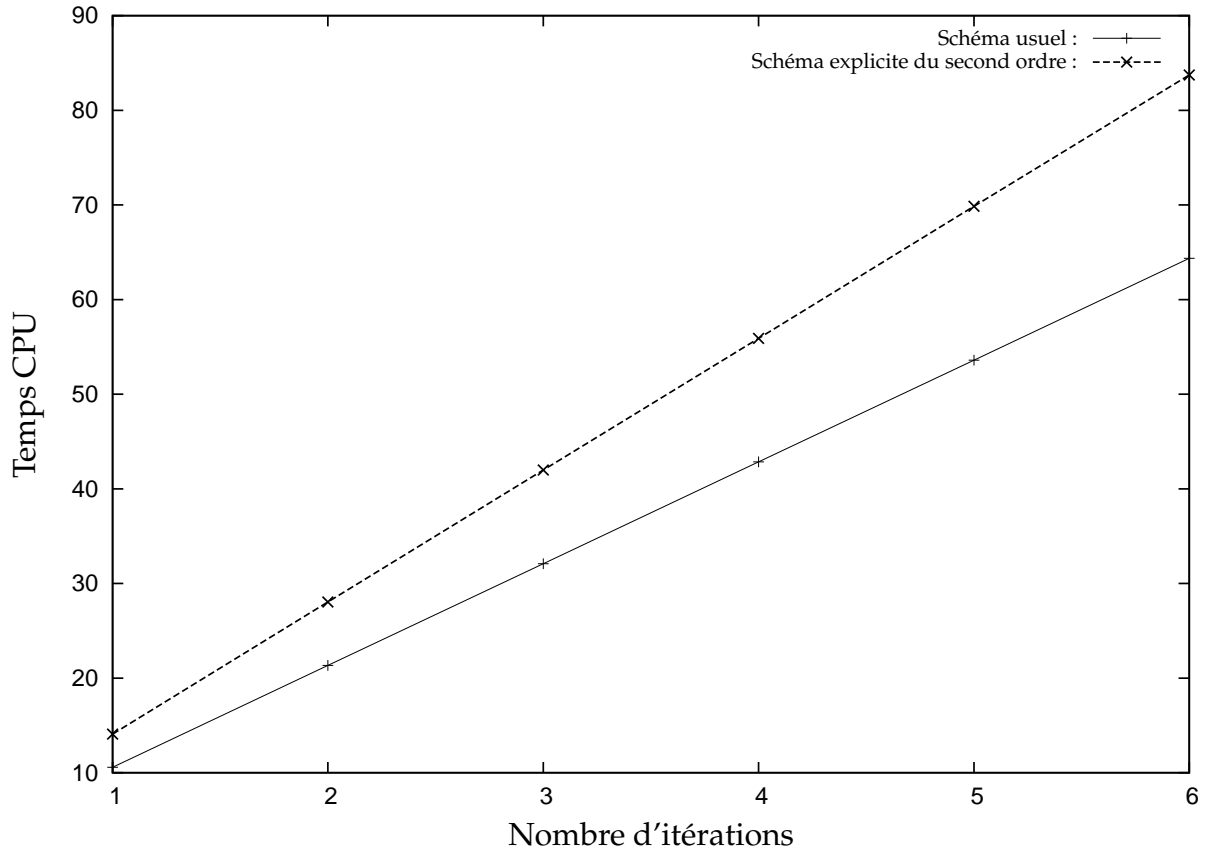


FIG. 2.4 – Le schéma explicite requiert 22% de temps supplémentaire par rapport au schéma usuel.

implicites donne un rapport d'environ 2 en faveur du schéma explicite. Sur l'exemple testé, le schéma implicite repose sur la méthode de Newton, qui nécessite sur ce cas en moyenne 4 itérations par calcul de champ - soit l'équivalent de 4 évaluations de $l'_{\varepsilon^k, j}(0)$ par exemple. Pour calculer un champ, le schéma explicite du second ordre nécessite quant à lui l'équivalent de deux calculs de $l'_{\varepsilon^k, j}(0)$ par exemple puisqu'en plus de cette valeur il est nécessaire de calculer $l''_{\varepsilon^k, j}(0)$.

2.5 Accélération du calcul par réduction du pas de temps

2.5.1 Introduction

Le phénomène signalé au chapitre 1 apparaît clairement sur les figures 2.2 et 2.3 : une convergence très rapide est observée au cours des premières itérations, suivie d'une convergence relativement lente après une vingtaine d'itérations. Il apparaît dès lors peu pertinent d'affiner le calcul lors des premières itérations, où la distance du champ à sa limite est encore grande. Suivant cette idée, nous pouvons proposer une première démarche pour accélérer le calcul.

Par leur propriété de monotonie, les méthodes exposées précédemment donnent des résultats satisfaisants pour de larges plages de pas de temps. Une stratégie simple permettant d'accélérer le calcul consiste à initier ce dernier avec un grand pas de temps de manière à profiter de la convergence rapide des algorithmes. Le champ obtenu est ensuite discrétisé plus finement puis les algorithmes sont réamorçés avec ce nouveau champ et le pas de temps plus petit qui lui est associé.

2.5.2 Méthode

Pour discrétiser plus finement en temps le champ obtenu après quelques itérations, deux méthodes ont été envisagées : une interpolation polynomiale d'ordre 1 et une régularisation par prolongement par zéro du spectre de Fourier. Les deux méthodes ont donné des résultats analogues.

Etant donnés ΔT et Δt un grand et un petit pas de temps, l'algorithme utilisé pour passer de ΔT à Δt est donc le suivant :

- Calcul de $\varepsilon^{k\Delta T}$ par $k_{\Delta T}$ itérations de l'un des algorithmes précédent.
- Affinement de la discrétisation de $\varepsilon^{k\Delta T}$ pour obtenir $\varepsilon^{k\Delta t}$.
- Reprise d'un nouvel algorithme monotone au pas de temps Δt avec $\varepsilon^{k\Delta t}$ comme champ initial.

2.5.3 Résultats numériques

Cette méthode a été testée sur l'exemple de la section 2.4.2 avec le schéma explicite du second ordre. Cinq itérations ont été calculées avec un pas de temps ΔT puis dix avec un pas de temps $\Delta t = \frac{\Delta T}{2}$. L'affinement de la discrétisation a été calculé par interpolation. Après quinze itérations la fonctionnelle atteint une valeur supérieure à celle obtenue par le même schéma monotone à pas de temps constant Δt . Le résultat est satisfaisant sur deux points : l'optimisation est meilleure et le temps de calcul est plus faible¹⁰. Une autre justification à cette approche peut être mise en avant. Dans de nombreux

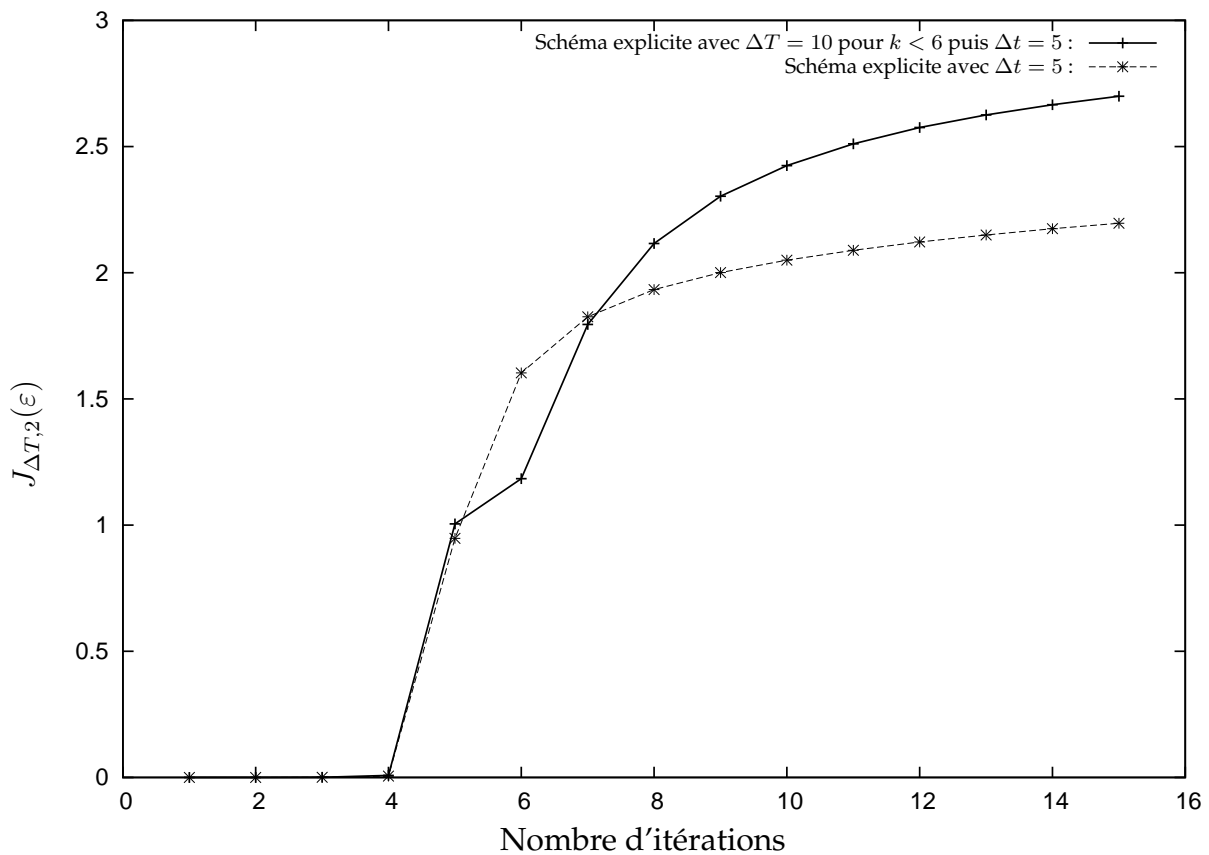


FIG. 2.5 – Un changement de pas de temps est opéré à l'itération $k = 5$.

exemples, le champ nul est un point critique de la fonctionnelle. Il suffit en effet pour que cela soit le cas que $O\psi_0(T)$ soit nul. On parle alors d'absence de recouvrement¹¹.

¹⁰Pour information, le rapport des temps de calcul des quinze premières itérations est de 9.

¹¹en anglais 'overlap'.

Cette situation se produit lorsque le produit scalaire $\langle \chi(T) | \psi(T) \rangle = \langle \psi(T) | O | \psi(T) \rangle$ est nul ou plus généralement lorsque χ est μ -orthogonal à ψ . Dans ce cas, les schémas monotones initiés avec le champ $\varepsilon^0 = 0$ ne peuvent théoriquement pas quitter ce point, qui constitue un point fixe de tous les algorithmes précédents. Pourtant, les erreurs d'arrondis numériques provoquent une instabilité qui conduit les algorithmes à quitter ce point fixe. Ce comportement est observé sur les figures 2.2 et 2.3 où la fonctionnelle, après avoir stagné autour du point $\varepsilon = 0$, le quitte brusquement et entame un processus d'optimisation. Cette observation suggère de ne pas discrétiser trop finement lors les premières itérations de manière à quitter rapidement le point critique $\varepsilon = 0$. Une autre stratégie d'accélération fait l'objet du chapitre 4.

2.5.4 Discrétisation spatiale

Tous les calculs développés dans les sections 2.3 et 2.4 sont corrects si aucune discrétisation spatiale n'est effectuée. Pourtant, il faut en pratique choisir une base de discrétisation parmi celles présentées à la section 1.3.3 pour représenter les fonctions et évaluer les produits hermitiens d'espace. Vérifions que dans le cas d'une discrétisation associée à l'espace physique les calculs de la section 2.4 restent valides.

Introduisons un paramètre de discrétisation M et définissons les points $x_i = \frac{i}{M+1}L$. La fonction d'onde ψ est discrétisée en ces points et les inconnues sont alors $\psi(x_1), \psi(x_2), \dots, \psi(x_M)$. Notons que de la sorte, nous prenons implicitement en compte le fait $\psi(0) = \psi(L) = 0$, ce qui revient à imposer une condition de Dirichlet au bord du domaine. Dans les simulations numériques, l'application de l'Hamiltonien est aisée pour ce qui concerne la partie $V - \mu\varepsilon$ puisqu'elle conduit à la multiplication par une matrice diagonale. L'application de l'opérateur H_0 est en revanche plus complexe. Pour la réaliser de manière approximative, un changement de base est calculé. L'opérateur H_0 est en effet diagonal dans la base de Fourier.

Au cours d'une itération en temps le calcul est effectué selon l'algorithme :

Soit $\psi = [\psi(x_1), \psi(x_2), \dots, \psi(x_M)]$:

- Calcul de $\Psi = [0, \psi(x_1), \psi(x_2), \dots, \psi(x_M), 0, -\psi(x_M), -\psi(x_{M-1}), \dots, -\psi(x_1)]$,

- Calcul de $\hat{\Psi} = FFT(\Psi)$, où FFT représente l'opérateur associé à la transformée de Fourier rapide¹²,
- Calcul de $\hat{\Psi}_p = (e^{-\frac{H_0 \Delta T}{2i}})_d \cdot \hat{\Psi}$, où $(e^{-\frac{H_0 \Delta T}{2i}})_d$ est la matrice diagonale associée à $(e^{-\frac{H_0 \Delta T}{2i}})$ dans la base de Fourier,
- Calcul de $\Psi_p = FFT^{(-1)}(\hat{\Psi}_p)$,
- Troncature de $\Psi_p : \Psi_t = [\Psi_p(2), \dots, \Psi_p(M + 1)]$.

Nous définissons alors le produit scalaire par :

$$\langle \psi, \phi \rangle_M = \frac{1}{M+1} \sum_{l=1}^M \bar{\psi}(x_l) \phi(x_l),$$

qui coïncide avec le produit scalaire standard de \mathbb{L}^2 pour les polynômes trigonométriques de degré impair inférieur à M .

En continuant de noter $\check{\psi} = e^{iH_0 \frac{\Delta T}{2}} \psi$ et $\hat{\psi} = e^{-iH_0 \frac{\Delta T}{2}} \psi$, cette méthode permet par exemple de conserver la propriété $\langle \hat{\psi}_1, \psi_2 \rangle_N = \langle \psi_1, \check{\psi}_2 \rangle_N$, ce qui valide, avec ces définitions les calculs de la section 2.4. La monotonie est donc assurée dans le cas de cette discrétisation en espace.

¹²On se référera à [36] pour plus de détails sur cette méthode.

Chapitre 3

Applications, tests numériques

Résumé

Nous présentons maintenant différents tests numériques des schémas monotones discrets. Ces simulations mettent en évidence un certain nombre d'améliorations par rapport aux approches antérieures. Trois exemples sont traités. Le premier test est effectué sur un modèle décrivant la vibration de la liaison entre un atome d'hydrogène et un atome d'oxygène. Outre la stabilisation et l'accélération des calculs apportée par la discrétisation présentée au chapitre 2, les schémas monotones discrets donnent lieu à des champs permettant d'atteindre de plus importantes valeurs de la fonctionnelle. Le deuxième problème abordé est celui du déplacement d'une particule entre deux puits de potentiel. Cet exemple illustre les processus physiques mis en jeu au cours du processus de contrôle. Le dernier exemple relève du problème du contrôle de l'orientation et de l'alignement par laser, traité antérieurement par diverses méthodes, en particulier stochastiques. Les algorithmes monotones permettent de calculer des champs d'une nature différente de ceux présentés précédemment. Un phénomène de *rotationnal ladder climbing* est notamment mis en évidence. Une présentation complémentaire des résultats de ce chapitre est donnée dans [37, 38].

Sommaire

3.1	Introduction	72
3.2	Excitation par champ laser de la liaison $O - H$	73
3.2.1	Introduction	73
3.2.2	Système physique	73
3.2.3	Problème de contrôle	74
3.2.4	Résultats numériques	76
3.2.5	Apport des schémas monotones discrets	76
3.3	Déplacement d'une particule entre deux puits de potentiel	78
3.3.1	Introduction	78
3.3.2	Modèle, problème de contrôle	78
3.3.3	Résultats numériques	80
3.3.4	Conclusion	81
3.4	Contrôle de l'alignement et de l'orientation moléculaire	83
3.4.1	Introduction	83
3.4.2	Système physique	83
3.4.3	Problème de contrôle	86
3.4.4	Résultats obtenus par algorithmes génétiques	88
3.4.5	Autres approches	89
3.4.6	Adaptation des schémas monotones au problème	89
3.4.7	Résultats numériques	92
3.4.8	Conclusions	100
3.5	Perspectives	101

3.1 Introduction

Les schémas monotones introduits au chapitre 2 sont ici testés sur des systèmes physiques. Trois exemples sont abordés dans ce chapitre. Le premier concerne un modèle

simple de vibration de la liaison $O - H$. Il s'agit de contrôler la position de H dans le potentiel de type Morse créé par l'atome O . Ce problème a déjà été traité par algorithmes monotones [28], mais suivant des versions non monotones après discrétisation. Nous présentons ensuite un problème théorique de déplacement de particule entre deux puits de potentiels. Ce test a pour but principal de mettre en évidence sur un exemple simple les phénomènes mis en jeu lors du contrôle. Cette section, issue d'un problème suggéré par P. Rouchon, fait suite à des résultats présentés dans [39]. Nous abordons enfin le problème du contrôle de l'alignement et de l'orientation moléculaire par rayonnement micro-onde. Cette question, abordée par différentes approches, en particulier stochastiques, n'avait jusqu'alors pas été traitée par schémas monotones. Ces algorithmes donnent accès à des solutions nouvelles, au contenu physique intéressant. Cette section présente partiellement un travail effectué en collaboration avec C.M. Dion et G. Turinici [38, 37]. Ces différentes études visent également à une meilleure compréhension de ces schémas, du point de vue mathématique.

3.2 Excitation par champ laser de la liaison $O - H$

3.2.1 Introduction

Le modèle présenté ci-dessous a fait l'objet de nombreuses études en contrôle quantique [28, 29, 32]. Les schémas monotones utilisés au cours de celles-ci perdent leur caractère monotone lors des discrétisations en temps, ce qui engendre un certain nombre d'instabilités numériques.

3.2.2 Système physique

Le système étudié est la liaison chimique $O - H$. Le modèle est unidimensionnel, pour des raisons de symétrie. Notons x la variable d'espace représentant la distance à l'atome d'oxygène. La fonction d'onde considérée est celle du couple $O - H$, représentée dans le référentiel barycentrique du système. Le potentiel est approché par le potentiel empirique de Morse [40, 41] :

$$V(x) = D_0((e^{-\beta(x-x_0)} - 1)^2 - 1).$$

Ce potentiel est représenté sur la figure 3.1.

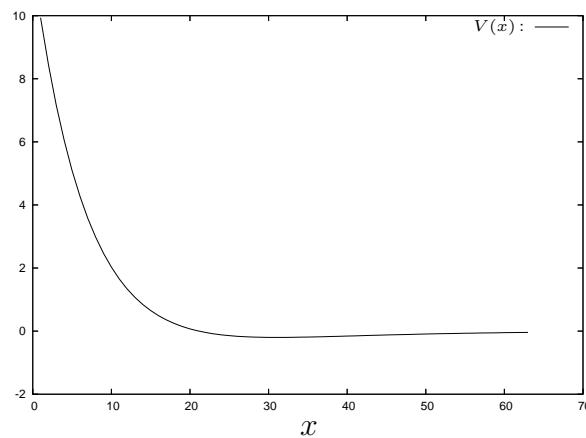


FIG. 3.1 – Potentiel électrostatique du modèle de liaison $O - H$.

Sous l'action d'un champ électrique externe, un terme correctif vient ici modifier ce potentiel, comme nous l'avons vu au chapitre 1. En première approximation, celui-ci est de la forme évoquée au chapitre 1 et le potentiel à considérer est alors :

$$V'(x, t) = V(x) - \mu(x)\varepsilon(t),$$

où ε est le champ électrique externe et μ la fonction définie par [42] :

$$\mu(x) = \mu_0 x e^{-\frac{x}{x^*}}.$$

3.2.3 Problème de contrôle

Présentation du problème

Nous nous proposons de modifier la distance interatomique entre l'oxygène et l'hydrogène par l'intermédiaire d'un rayonnement laser. Le but est plus précisément de déplacer l'atome d'hydrogène à une distance prescrite. Après modélisation, le problème de contrôle consiste à localiser en un temps T cette fonction d'onde autour d'une abscisse x' donnée en partant du système au repos, c'est-à-dire de la fonction d'onde égale au premier vecteur propre de l'Hamiltonien interne. Le temps de contrôle proposé dans la littérature est $T = 131072$ unités atomiques, ce qui correspond à peu près à 3,167 picosecondes.

Fonctionnelle de coût

La fonctionnelle considérée est [28] :

$$J(\varepsilon) = \langle \psi(T) | O | \psi(T) \rangle - \alpha \int_0^T \varepsilon^2(t) dt,$$

où α est un réel positif et l'observable O est définie comme opérateur par :

$$\begin{aligned} O : \mathbb{L}^2(\mathbb{R}, \mathbb{C}) &\rightarrow \mathbb{L}^2(\mathbb{R}, \mathbb{C}) \\ \psi &\mapsto \left(x \mapsto \frac{\gamma_0}{\sqrt{\pi}} e^{-\gamma_0^2(x-x')^2} \psi(x) \right). \end{aligned}$$

Le choix de O repose sur la limite suivante :

$$\delta(x - x') = \lim_{\gamma \rightarrow \infty} \frac{\gamma}{\sqrt{\pi}} e^{-\gamma^2(x-x')^2},$$

où δ représente la distribution de Dirac. Cette partie de la fonctionnelle tend donc à localiser la fonction d'onde dans un voisinage de l'abscisse x' . Le facteur de pénalisation α est fixé à la valeur 1.

Schémas monotones utilisés, conditions initiales

La fonction d'onde initiale, notée ψ_0 dans les chapitres précédents, est choisie comme étant le vecteur propre associé à la plus petite valeur propre de l'Hamiltonien interne, ce qui correspond à l'état du système au repos. Le champ de contrôle initial est le champ nul. Ce choix n'est pas nécessairement optimal, car ce champ est en effet très proche d'un point critique, en ce sens que l'adjoint correspondant a une norme très petite¹³; néanmoins il permet d'effectuer une comparaison avec les études précédemment proposées en plus de tester la rapidité de convergence dans les premières itérations. Signalons enfin que les schémas monotones testés ont été le schéma implicite et les schémas explicites présentés au chapitre 2.

¹³C'est la situation décrite au chapitre 1 lors de l'absence d'*overlap*.

3.2.4 Résultats numériques

Valeurs numériques

Les unités atomiques sont celles pour lesquels le terme \hbar de l'équation de Schrödinger vaut 1. En utilisant ces unités, le tableau ci-dessous résume les valeurs des différents paramètres des modèles précédents :

O		V			μ	
γ_0	x'	D_0	β	x_0	μ_0	x^*
25	2,5	0,1994	1,189	1,821	3,088	0,6

Les simulations sont effectuées sur un intervalle d'espace $[0, L]$ suffisamment grand pour que les fonctions d'ondes considérés y soient localisées. Numériquement, cela revient à imposer dans le code de calcul des conditions de Dirichlet.

Champ obtenu

Le champ obtenu à la convergence numérique par le schéma explicite du second ordre est représenté à la figure 3.2. Ce champ a été obtenu après 2000 itérations. Les champs obtenus par le schéma implicite ont la même allure que ce champ. En particulier, le phénomène de battement observé apparaissait déjà dans les études antérieures.

Résolution du problème de contrôle

La figure 3.3 représente la localisation de la fonction d'onde après une propagation avec le champ optimal calculé par le schéma explicite du second ordre.

La fonction d'onde se trouve localisée dans la même zone que l'observable.

3.2.5 Apport des schémas monotones discrets

Ce modèle permet de valider les calculs effectués par schémas monotones discrets. Les champs obtenus possèdent les mêmes caractéristiques que ceux calculés par des schémas monotones usuels. La stabilisation apportée par les nouveaux schémas permet d'obtenir des champs plus proches des points critiques de la fonctionnelle, en menant

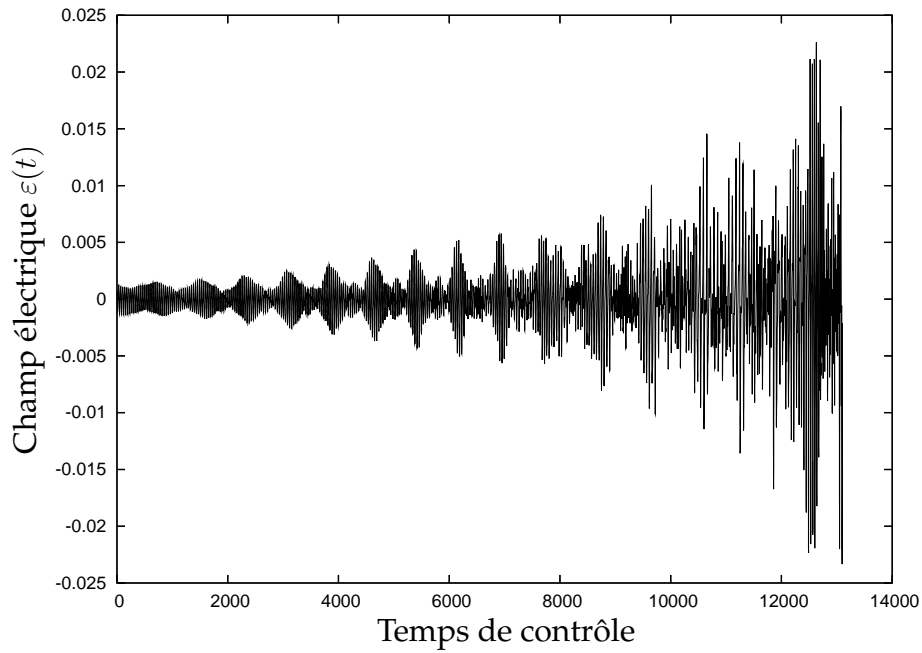


FIG. 3.2 – Champ de contrôle de l’alignement obtenu en choisissant un champ initial non nul.

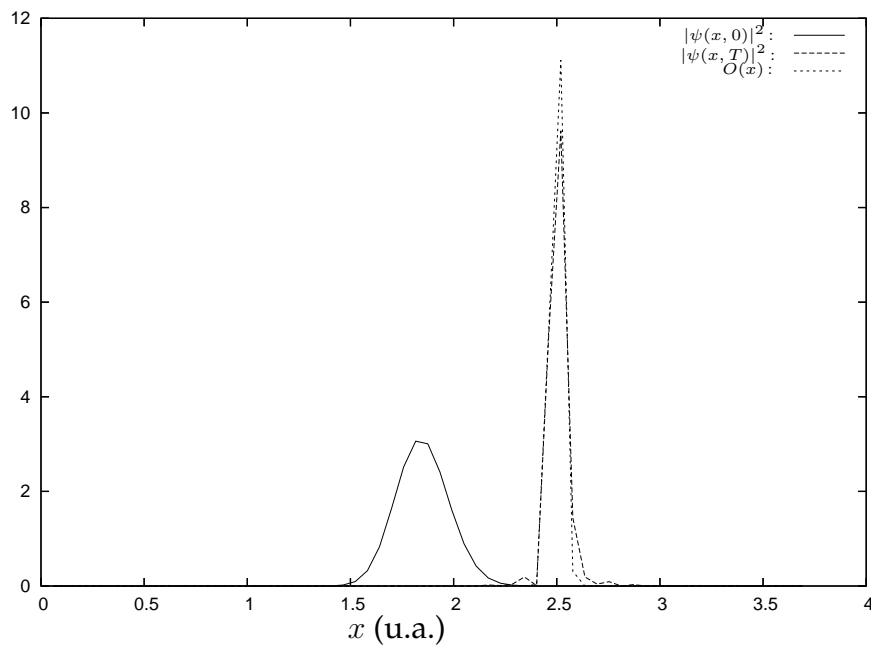


FIG. 3.3 – Configuration initiale, configuration finale et observable représentées dans l’espace physique.

le calcul jusqu'à la convergence numérique, ce qui n'est pas envisageable avec les schémas monotones usuels. Les valeurs de la fonctionnelle obtenues sont par conséquent meilleures : le champ obtenu avec l'algorithme non discret donne une valeur de 3,14 avant explosion numérique alors qu'à pas de temps égal, le champ représenté à la figure 3.3 donne une valeur de 6,60. Les tests de la stratégie d'accélération de calcul par raffinement du pas de temps au cours des itérations et de changement des paramètres (δ, η) présentés à la section 2.5 ont été effectués sur ce modèle.

3.3 Déplacement d'une particule entre deux puits de potentiel

3.3.1 Introduction

Abordons le problème plus abstrait mais plus simple du contrôle du déplacement d'une particule entre deux puits de potentiels. Nous souhaitons concevoir un rayonnement laser permettant de déplacer une particule "piégée" dans un puits de potentiel vers un autre puits de potentiel. Le système physique étudié dans cette partie étant purement théorique, le modèle est exposé ici relativement succinctement.

3.3.2 Modèle, problème de contrôle

Présentation du problème

Nous considérons un modèle de potentiel unidimensionnel, comportant deux puits. L'état initial est le premier vecteur propre de l'Hamiltonien fictif associé au potentiel ne comportant que le puits dans lequel est initialement la particule. Nous souhaitons que la fonction d'onde ψ associée à cette particule reste localisée dans le domaine du puits en l'absence de champ électrique externe. Les dimensions des puits sont donc choisies de telle sorte que le premier état excité soit lui aussi localisé dans le puits. L'état cible ψ_{cible} est choisi de la même manière, mais en considérant cette fois-ci le deuxième puits. La situation est représentée sur la figure 3.4.

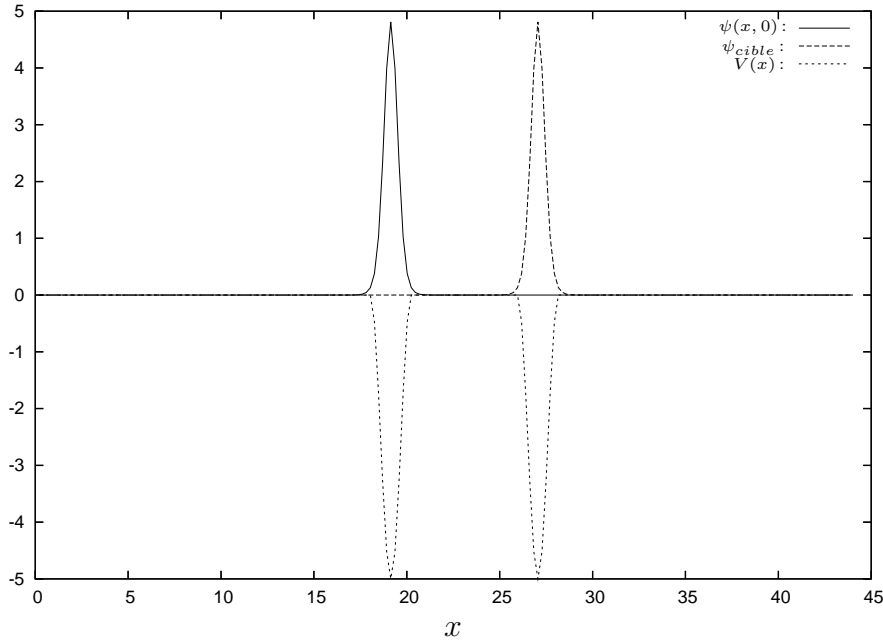


FIG. 3.4 – Potentiel unidimensionnel comportant deux puits et état initial et cible du problème de contrôle.

L'équation de Schrödinger considérée pour calculer l'évolution de la particule est alors :

$$i\partial_t\psi(x, t) = [-\Delta + V(x) - \mu(x)\varepsilon(t)]\psi(x, t),$$

où Δ est l'opérateur Laplacien, V le potentiel associé au deux puits, μ le moment dipolaire et ε le champ électrique de contrôle. Dans le modèle que nous considérons, μ est simplement la fonction $x \mapsto x$. Ce choix revient à supposer que le champ électrique créé par le laser est constant en espace à l'échelle de la particule considérée. La masse est fixée à une valeur de 1.

Fonctionnelle de coût

La fonctionnelle de coût utilisée dans ce problème est la suivante :

$$J(\varepsilon) = 2\Re\langle\psi_{cible}|\psi(T)\rangle - \int_0^T \alpha(t)\varepsilon^2(t)dt. \quad (3.1)$$

Une contrainte de réalisation pratique du contrôle quantique par champ électrique est que les contrôles tendent vers 0 sur les bords de l'intervalle de contrôle $[0, T]$. Pour tenir

compte de celle-ci lors du calcul de l'optimisation, le paramètre α est choisi comme étant une fonction prenant de fortes valeurs en 0 et en T .

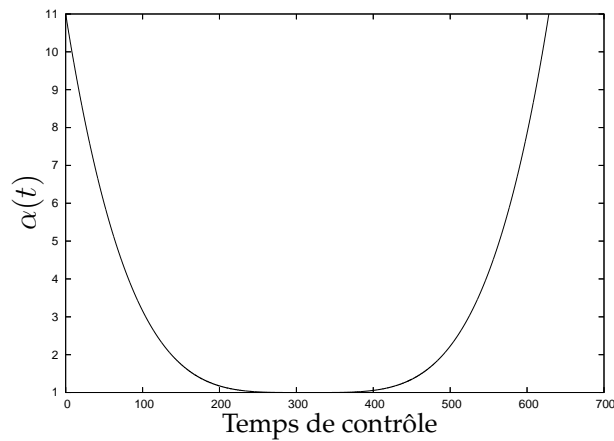


FIG. 3.5 – Valeurs du paramètre de pénalisation du champ au cours du temps de contrôle.

Cette démarche permet de tester la qualité du contrôle de la forme du champ par le paramètre α .

Schémas monotones utilisés

Nous testons ici le schéma explicite du second ordre découlant de la fonctionnelle J définie à l'équation (3.1). Pour des raisons de simplicité nous propageons l'adjoint avec le même champ que l'état, ce qui revient à ne pas réaliser d'optimisation lors de la propagation rétrograde de cette fonction.

3.3.3 Résultats numériques

Champ obtenu

Le champ électrique obtenu à la convergence numérique est représenté sur la figure 3.6. Il prend de petites valeurs aux bords de l'intervalle, ce qui correspond à l'objectif fixé lors du choix de la fonction α .

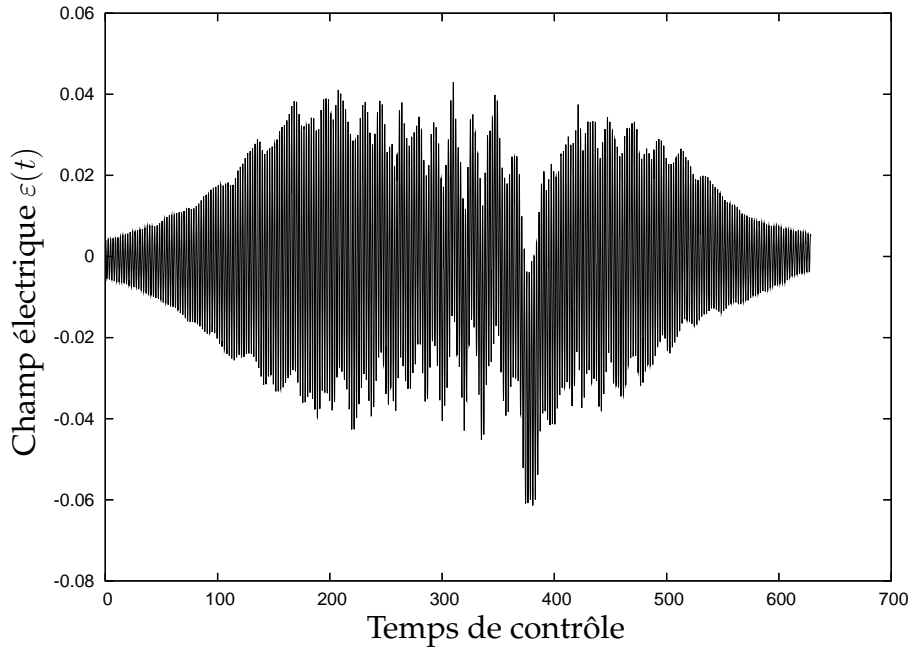


FIG. 3.6 – Champ électrique réalisant le transfert entre les deux puits de potentiel.

Résolution du problème de contrôle

En simulant la propagation au cours du temps, il apparaît que le principal phénomène physique mis en jeu lors du processus de contrôle est l'effet tunnel. La particule est en effet excitée par le champ électrique et se délocalise peu à peu dans le second puits. La simulation met plus précisément en évidence trois étapes de contrôle. La première est une phase d'excitation de la particule. Suit une phase de transfert, représentée sur la figure 3.7, puis une phase de désexcitation de la particule dans le deuxième puits. Différentes fonctions α ont également été testées. Les résultats montrent naturellement qu'une augmentation de la valeur de ce paramètre détériore le résultat du point de vue du contrôle. Pour de grandes valeurs de ce paramètre, l'algorithme ne parvient pas à faire sortir la fonction d'onde du puits initial, ou bien y parvient mais avec des champs très discontinus.

3.3.4 Conclusion

Ce problème théorique nous a permis de tester la validité des schémas découlant de fonctionnelles de la forme (3.1). Le paramètre α s'avère de plus un outil efficace dans

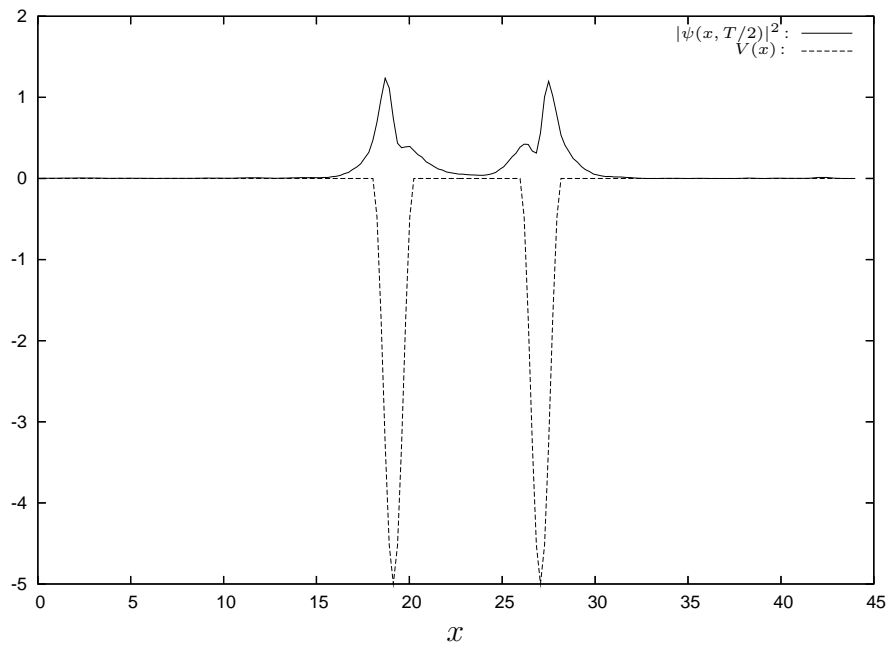


FIG. 3.7 – Configuration intermédiaire, au temps $\frac{T}{2}$. La fonction d'onde traduit un état intermédiaire, où la masse est répartie entre les deux puits.

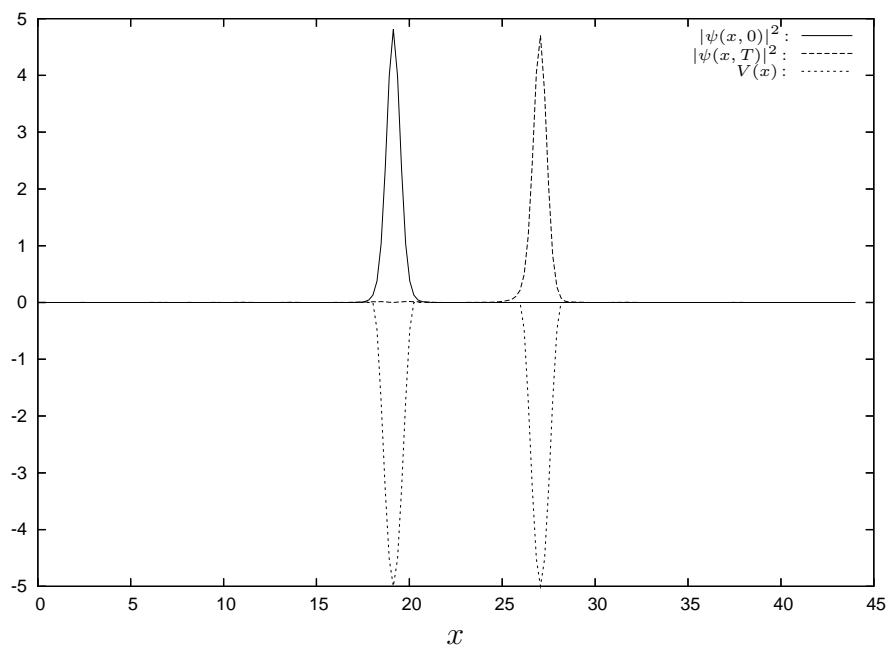


FIG. 3.8 – Configuration initiale et configuration finale.

la conception de la forme du champ. D'un point de vue physique, la simulation de la propagation par le champ optimal permet de retrouver le phénomène connu d'effet tunnel.

3.4 Contrôle de l'alignement et de l'orientation moléculaire

3.4.1 Introduction

Le contrôle de l'alignement et de l'orientation moléculaire a fait l'objet de nombreuses études aussi bien numériques que théoriques. La résolution de ce problème présente en effet plusieurs intérêts. L'orientation de molécules permet par exemple d'optimiser la cinétique de réactions chimiques [43, 44, 45, 46] voir de les catalyser [47]. Le développement de procédés de traitement des surfaces et les méthodes de conception de systèmes à l'échelle nanométrique par impulsion laser peuvent également tirer profit de telles études [48, 49].

3.4.2 Système physique

Modèle

Le système physique considéré est la molécule de cyanure HCN . L'intérêt porté à ce système provient de son état fondamental qui correspond à une configuration linéaire. La molécule reste dans cet état sur une plage de fréquence différente de celle susceptible d'être utilisée pour contrôler sa position angulaire. Elle constitue par conséquent un exemple simple et facilement manipulable sur lequel différentes méthodes de contrôle de l'orientation et de l'alignement peuvent être testées. La molécule est donc identifiée à un rotateur rigide. La fonction d'onde associée à cette molécule est alors décrite au moyen de coordonnées sphériques. Ces coordonnées représentent intuitivement la position de la molécule par rapport à l'axe de polarisation du champ électrique externe auquel elle est soumise. Pour des raisons de symétrie, le modèle étudié ne prend en compte que la coordonnée angulaire θ représentant l'angle à cet axe.

Nous supposons également que la molécule n'est soumise à aucune autre forme de potentiel électrique que celui engendré par le champ électrique de contrôle. L'Hamiltonien du système - opérateur associé à l'énergie d'une molécule - est donc composé de deux termes : l'Hamiltonien interne, associé à l'énergie cinétique de rotation (aussi appelé moment cinétique) et un terme dipolaire, associé à l'énergie d'interaction entre la molécule et le champ laser.

L'Hamiltonien interne du système est, à un facteur B près, l'opposé de l'opérateur Laplacien et est noté dans la littérature \hat{J}^2 . Ce dernier est appelé dans ce cas *moment angulaire* par les physiciens et les chimistes. D'un point de vue mathématique, le Laplacien en coordonnées polaires, $-\hat{J}^2$ est l'opérateur de Laplace-Beltrami. Le réel B , appelé *constante rotationnelle*, est défini par la formule :

$$B = \frac{\hbar}{4\pi I},$$

où I est le moment d'inertie de la molécule par rapport à son centre de masse.

L'interaction avec le champ électrique relève quant à elle de deux phénomènes. D'une part, en tant que molécule asymétrique, le cyanure possède un moment dipolaire permanent \vec{p} non nul. Une modélisation usuelle de ce phénomène consiste à introduire un terme linéaire par rapport au champ dans l'Hamiltonien :

$$-\vec{p} \cdot \vec{\varepsilon}(t) = -\mu_0 \varepsilon(t) \cos \theta.$$

D'autre part, le champ électrique externe provoque une modification de la distribution des charges au sein même de la molécule, ce qui engendre l'apparition d'un moment dipolaire induit \vec{p}_i dans la molécule. Cette modification est elle aussi supposée linéaire par rapport au champ, rendant le terme correspondant dans l'Hamiltonien quadratique. Ce phénomène est anisotrope, les composantes du champ $\vec{\varepsilon}$ sont donc affectées des facteurs différents dans cette modélisation. L'énergie associée à ce phénomène est donc :

$$\vec{p}_i(\vec{\varepsilon}(t)) = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \alpha_{\parallel} \cos \theta \varepsilon(t) \\ \alpha_{\perp} \sin \theta \varepsilon(t) \end{pmatrix},$$

où $\alpha_{\parallel}, \alpha_{\perp}$ sont les coefficients de polarisabilité de la molécule. L'Hamiltonien du système est donc finalement :

$$\begin{aligned} H &= B\hat{J}^2 - \mu_0\varepsilon(t)\cos\theta - \frac{\varepsilon^2(t)}{2}(\alpha_{\parallel}\cos^2\theta + \alpha_{\perp}\sin^2\theta) \\ &= B\hat{J}^2 - \mu_0\varepsilon(t)\cos\theta - \frac{\varepsilon^2(t)}{2}(\Delta\alpha\cos^2\theta + \alpha_{\perp}), \end{aligned}$$

où $\Delta\alpha = \alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp}$. Son évolution est décrite par l'équation de Schrödinger :

$$i\partial_t\psi(\theta, t) = H\psi(\theta, t). \quad (3.2)$$

De plus amples détails sur ce modèle sont donnés dans [50]. Pour une présentation générale de la notion de moment cinétique en mécanique quantique, on pourra également se référer au chapitre VI de [11].

Base spectrale

Dans le cadre de ce modèle, il est possible de diagonaliser explicitement l'opérateur de Laplace-Beltrami $\Delta = -\hat{J}^2$. Les *harmoniques sphériques*, vecteurs propres associés, sont donnés par la formule :

$$Y_J(\theta) = \sqrt{\frac{2J+1}{4\pi}} P_J(\cos\theta),$$

où P_J est le J -ème polynôme de Legendre défini par :

$$P_l(x) = \frac{1}{2^l l!} \frac{d^l}{dx^l} (x^2 - 1)^l.$$

La valeur propre associée à Y_J est $-J(J+1)$.

Décomposons la fonction d'onde du système selon cette base :

$$\psi(\theta, t) = \sum_{J=0}^{\infty} c_J(t) Y_J(\theta),$$

où les coefficients c_J vérifient :

$$\sum_{J=0}^{\infty} |c_J(t)|^2 = 1.$$

Nous utilisons à partir de maintenant la notation :

$$\langle f|O|g\rangle = 2\pi \int_0^{\pi} \overline{f(\theta)} O(\theta) g(\theta) \sin\theta d\theta.$$

Le facteur 2π provient de l'intégration suivant la coordonnée sphérique azimutale ϕ . L'équation de Schrödinger écrite dans la base $(Y_J)_{J \in \mathbb{N}}$ est alors :

$$\begin{aligned} i\hbar\partial_t c_J &= [BJ(J+1) - \frac{\alpha_\perp \varepsilon^2(t)}{2}]c_J \\ &\quad - \mu_0 \varepsilon(t) \sum_{J'=0}^{+\infty} c_{J'} \langle Y_J | \cos \theta | Y_{J'} \rangle \\ &\quad - \frac{\Delta \alpha \varepsilon^2(t)}{2} \sum_{J'=0}^{+\infty} c_{J'} \langle Y_J | \cos^2 \theta | Y_{J'} \rangle. \end{aligned} \quad (3.3)$$

Il est de plus possible de calculer explicitement les coefficients $\langle Y_J | \cos \theta | Y_{J'} \rangle$:

$$\begin{aligned} \langle Y_J | \cos \theta | Y_{J+1} \rangle &= \frac{J+1}{\sqrt{(2J+3)(2J+1)}}, \\ \langle Y_J | \cos \theta | Y_{J-1} \rangle &= \frac{J+1}{\sqrt{(2J+1)(2J-1)}}, \\ \langle Y_J | \cos \theta | Y_{J'} \rangle &= 0, \quad \text{pour } |J' - J| \neq 1, \end{aligned}$$

et $\langle Y_J | \cos^2 \theta | Y_{J'} \rangle$:

$$\begin{aligned} \langle Y_J | \cos^2 \theta | Y_{J+2} \rangle &= \frac{(J+2)(J+1)}{(2J+3)\sqrt{(2J+5)(2J+1)}}, \\ \langle Y_J | \cos^2 \theta | Y_{J-2} \rangle &= \frac{J(J-1)}{(2J-1)\sqrt{(2J+1)(2J-3)}}, \\ \langle Y_J | \cos^2 \theta | Y_J \rangle &= \frac{1}{3} + \frac{2}{3} \frac{J(J+1)}{(2J+3)(2J-1)}, \\ \langle Y_J | \cos^2 \theta | Y_{J'} \rangle &= 0, \quad \text{pour } |J' - J| \neq 0, 2. \end{aligned}$$

3.4.3 Problème de contrôle

Selon que l'on souhaite contrôler l'alignement ou l'orientation de la molécule, des fonctionnelles différentes sont considérées. Nous notons désormais λ la fonction positive de pénalisation du champ. Pour optimiser l'alignement, une fonctionnelle possible est :

$$J_{\text{alignement}}(\varepsilon) = \langle \psi(T) | \cos^2 \theta | \psi(T) \rangle - \int_0^T \lambda(t) \varepsilon^2(t) dt, \quad (3.4)$$

alors que pour le contrôle de l'orientation, une fonctionnelle plus adéquate est donnée par :

$$J_{\text{orientation}}(\varepsilon) = \langle \psi(T) | \cos \theta | \psi(T) \rangle - \int_0^T \lambda(t) \varepsilon^2(t) dt, \quad (3.5)$$

Le choix des fonctions \cos et \cos^2 est motivé par des raisons pratiques. De même que dans le choix de O à la section 3.2.3, il suffit en effet de prendre une fonction qui ait un maximum en 0 pour optimiser l'orientation et une fonction qui ait des maxima en 0 et en π pour optimiser l'alignement. L'intérêt de ces deux fonctions particulières réside dans la simplification des calculs liés aux schémas. Les quantités $\langle \psi(T) | \cos \theta | \psi(T) \rangle$ et $\langle \psi(T) | \cos^2 \theta | \psi(T) \rangle$ auront en effet été calculées très simplement après la propagation grâce aux formules :

$$\begin{aligned}\langle \psi(T) | \cos \theta | \psi(T) \rangle &= \sum_{J,J'} \bar{c}_{J'} c_J \langle Y_{J'} | \cos \theta | Y_J \rangle, \\ \langle \psi(T) | \cos^2 \theta | \psi(T) \rangle &= \sum_{J,J'} \bar{c}_{J'} c_J \langle Y_{J'} | \cos^2 \theta | Y_J \rangle,\end{aligned}$$

qui ne sont constituées que de quantités calculées -les coefficients $c_{J'}$ ou pré-calculées - les matrices $\langle Y_{J'} | \cos \theta | Y_J \rangle$ et $\langle Y_{J'} | \cos^2 \theta | Y_J \rangle$.

Nous présentons à la section 3.4.7 et qu'au chapitre 4 d'autres fonctionnelles relevant du contrôle de l'alignement et de l'orientation. Celles-ci peuvent s'écrire sous la forme :

$$J'(\varepsilon) = 2\Re \langle \psi_{cible} | \psi(T) \rangle - \int_0^T \lambda(t) \varepsilon^2(t) dt, \quad (3.6)$$

où ψ_{cible} est une configuration "alignée" ou bien "orientée" de la molécule. Cette fonctionnelle s'avère être plus pratique par rapport aux objectifs des travaux du chapitre 4. Signalons enfin que l'étude qui suit donne des résultats analogues avec J' et avec $J_{alignement}$ et $J_{orientation}$. Nous ne présentons donc essentiellement que les résultats liés à $J_{alignement}$ et à $J_{orientation}$, excepté dans la partie 3.4.7 où J' nous permet de relever un phénomène intéressant. Notons en outre que la convergence des algorithmes est plus rapide pour J' que pour $J_{alignement}$ et $J_{orientation}$.

Nous choisissons comme temps de contrôle 20 périodes d'oscillation du système libre¹⁴, soit $T = 20T_{rot}$ avec $T_{rot} = \frac{\pi}{B}$. Cette période est la moitié de la période mathématique associée à la solution de $iy' = By$: nous avons en effet vu à la section 3.4.2 que les vecteurs propres de l'Hamiltonien interne, associés à (3.2) avec $\varepsilon = 0$ ont pour valeurs propres de la forme $J(J+1)B$, soit un multiple pair de la constante B , ce que induit une période réelle de T_{rot} .

¹⁴C'est-à-dire sans contrôle.

3.4.4 Résultats obtenus par algorithmes génétiques

De nombreuses études ont utilisé les algorithmes génétiques [51, 52, 53] pour optimiser les deux fonctionnelles (3.5) et (3.4). Ces méthodes stochastiques d'optimisation sont d'ordre 0 et requièrent beaucoup d'évaluations des fonctionnelles de coût étudiées. Ceci les rend coûteuses puisque chaque évaluation nécessite une propagation. Cette dernière caractéristique peut de plus s'avérer problématique pour certains problèmes de grandes dimensions.

Leurs avantages sont de produire des champs électriques facilement interprétables et réalistes du point de vue de leur conception expérimentale. Il est par exemple possible de calculer une optimisation dans \mathbb{R}^7 en se restreignant à des champs de la forme :

$$\varepsilon(t) = \varepsilon_f(t) \sin(\omega t + \phi),$$

avec :

$$\varepsilon_f(t) = \begin{cases} 0 & \text{si } t \leq t_0, \\ \varepsilon_0 \sin^2\left(\frac{\pi}{2}\left(\frac{t-t_0}{t_1-t_0}\right)\right) & \text{si } t_0 \leq t \leq t_1, \\ \varepsilon_0 & \text{si } t_1 \leq t \leq t_2, \\ \varepsilon_0 \sin^2\left(\frac{\pi}{2}\left(\frac{t_3-t}{t_3-t_2}\right)\right) & \text{si } t_2 \leq t \leq t_3, \\ 0 & \text{si } t_3 \leq t. \end{cases}$$

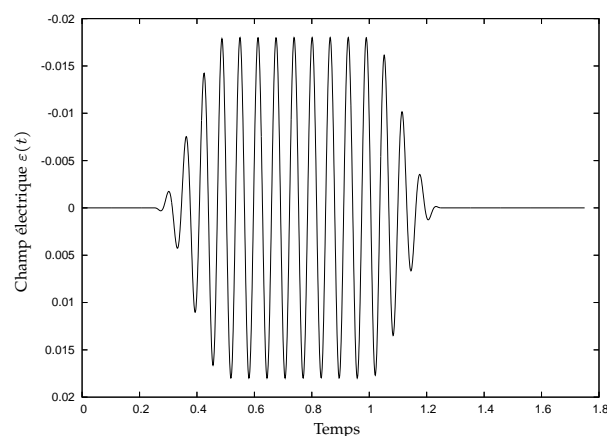


FIG. 3.9 – Exemple de champ considéré par les algorithmes génétiques.

Ce type de champ est parfois appelé *kick* lorsque la durée de l'impulsion est particulièrement brève. Dans ces travaux, le paramètre α est choisi nul, ce qui peut être justifié par la petite taille de l'espace d'optimisation qui impose d'emblée une contrainte importante sur les champs.

3.4.5 Autres approches

D'autres approches ont été utilisées pour traiter ce problème. Un certain nombre de résultats d'optimisation reposant sur des algorithmes de gradient sont présentés dans [54, 55]. Pour autant les algorithmes utilisés dans ces travaux sont présentés comme des boîtes noires et ne sont pas l'objet de recherches particulières. Une étude plus systématique des algorithmes est présentée dans [53], où une comparaison entre des approches déterministe et stochastique est effectuée.

3.4.6 Adaptation des schémas monotones au problème

Les algorithmes génétiques permettent d'aborder le problème de contrôle par une approche stochastique. Les schémas monotones fournissent quant à eux une solution déterministe. Il est dans ce cadre intéressant de tester ces algorithmes pour comparer les caractéristiques des champs obtenus par les deux procédures. Décrivons les spécificités de ce problème dans l'optique d'un traitement par schémas monotones.

Equations d'Euler-Lagrange

Nous explicitons dans cette section les équations d'Euler-Lagrange associées au problème puisque celles-ci ont une forme légèrement différente de celles présentées précédemment. Introduisons pour ce faire le multiplicateur de Lagrange χ associé à la contrainte (3.2). Rappelons que pour prendre en compte celle-ci un terme particulier est ajouté à la fonctionnelle J :

$$\widetilde{J}(\varepsilon) = J(\varepsilon) - 2\Re \int_0^T \langle \chi(t) | \partial_t + iH | \psi(t) \rangle dt.$$

Les équations d'Euler-Lagrange des fonctionnelles précédentes sont alors analogues à celles des chapitres précédents. Elles sont données par les systèmes suivants :

$$\begin{cases} i\partial_t\psi(\theta, t) &= H\psi(\theta, t) \\ \psi(\theta, t = 0) &= \psi_0(\theta) \end{cases}$$

$$\begin{cases} i\partial_t\chi(\theta, t) &= H\chi(\theta, t) \\ \chi(\theta, t = T) &= O(\psi(\theta, T)) \end{cases}$$

$$\lambda(t)\varepsilon(t) = -\Im\langle\chi(t)|\mu_0 \cos \theta + 2\varepsilon(t)(\Delta\alpha \cos^2 \theta + \alpha_\perp)|\psi(t)\rangle,$$

où O représente l'opérateur de multiplication par $\cos^2 \theta$ dans le cas de la fonctionnelle $J_{\text{alignement}}$ et par $\cos \theta$ dans le cas de la fonctionnelle $J_{\text{orientation}}$. La différence avec les exemples précédents réside essentiellement dans la présence du terme quadratique ε^2 dans les équations de Schrödinger.

Pénalisation du champ

Comme nous l'avons déjà stipulé à la section 3.3.2, les rayonnements électriques produits dans la pratique sont nuls sur les bords de l'intervalle de contrôle $[0, T]$. Pour tenir compte de cette contrainte lors du calcul de l'optimisation, le paramètre λ est encore une fois choisi comme étant une fonction prenant de fortes valeurs en 0 et en T . La figure 3.10 représente la valeur de α au cours du temps de contrôle.

Utilisation de bases spectrales

Pour tirer parti de la simplicité des calculs liés à la base spectrale présentés à la section 3.4.2, nous choisissons de calculer la propagation par une méthode de Galerkin associée à cette base. Les vecteurs propagés numériquement seront donc les composantes c_J de la fonction d'onde dans la base spectrale associée à l'Hamiltonien interne. La propagation est quant à elle effectuée selon (3.3) par un splitting d'opérateur. Les matrices associées au moment dipolaire μ et aux coefficients de polarisabilité α_\perp et $\Delta\alpha$ sont alors pré-calculées et diagonalisées pour accélérer leur exponentiation.

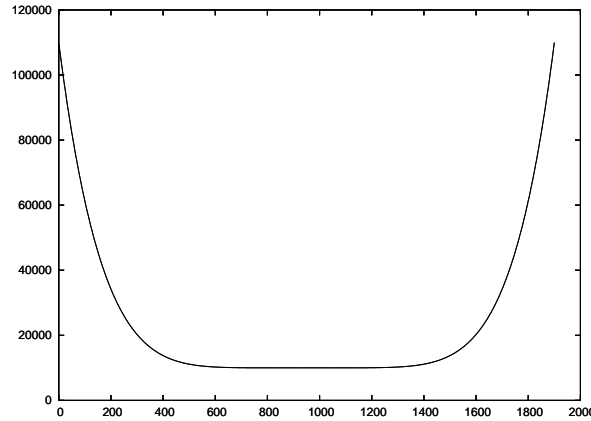


FIG. 3.10 – Valeurs du paramètre de pénalisation du champ au cours du temps de contrôle.

Terme quadratique de polarisabilité et optimisation du champ

L'optimisation est réalisée par le schéma explicite du second ordre. Le terme quadratique induit une légère modification dans le calcul du champ. La fonction à optimiser à chaque pas de temps n'a en effet plus la même dépendance par rapport au champ. Le calcul de la variation de la fonctionnelle entre deux champs ε' et ε donne dans ce cas :

$$\begin{aligned}
 J(\varepsilon') - J(\varepsilon) &= \langle \psi'(T) - \psi(T) | O | \psi'(T) - \psi(T) \rangle \\
 &+ \int_0^T (\varepsilon'(t) - \varepsilon(t)) \left(2\Im \langle \psi'(t) | \mu_0 \cos \theta | \chi(t) \rangle \right. \\
 &\quad \left. + (\varepsilon'(t) + \varepsilon(t)) \left(2\Im \langle \psi'(t) | \frac{\Delta\alpha \cos^2 \theta + \alpha_{\perp}}{2} | \chi(t) \rangle - \lambda(t) \right) \right) dt,
 \end{aligned}$$

où ψ , χ et ψ' , χ' représentent respectivement les états et adjoints associés aux champs ε et ε' . La fonctionnelle J représente quant à elle aussi bien $J_{\text{alignement}}$ que $J_{\text{orientation}}$. La différence entre ces deux fonctionnelles réside dans le choix de O - soit \cos , soit \cos^2 . Du point de vue des schémas monotones, la différence se situe seulement dans la condition finale de l'adjoint $O\psi(T)$.

Pour des raisons de simplicité, l'adjoint est propagé avec le même champ que l'état. En utilisant les notations définies au chapitre 2, le critère de monotonie discrète énoncé

dans ce chapitre devient alors :

$$\begin{aligned} \forall j, \quad 0 \leq j \leq N, \\ 2\Re\langle \tilde{\chi}_j^k | e^{-i[\mu_0 \cos \theta (\varepsilon_j^{k+1} - \varepsilon_j^k) + (\Delta\alpha \cos^2 \theta + \alpha_\perp)((\varepsilon_j^{k+1})^2 - (\varepsilon_j^k)^2)]\Delta T} - Id | \tilde{\psi}_j^{k+1} \rangle \\ - \lambda_j \Delta T ((\varepsilon_j^{k+1})^2 - (\varepsilon_j^k)^2) \geq 0. \end{aligned}$$

La mise à jour du champ est effectuée par les formules :

$$\begin{aligned} \varepsilon_j^{k+1} &= \varepsilon_j^k + h_j^{k+1} \\ h_j^{k+1} &= \frac{\Im\langle \tilde{\chi}_j | \mu_0 \cos \theta + \varepsilon_j^k (\Delta\alpha \cos^2 \theta + \alpha_\perp) | \tilde{\psi}_j \rangle - \lambda_j \varepsilon_j^k}{\lambda_j + \Delta T \Re\langle \tilde{\chi}_j | (\mu_0 \cos \theta + \varepsilon_j^k (\Delta\alpha \cos^2 \theta + \alpha_\perp))^2 | \tilde{\psi}_j \rangle - \Im\langle \tilde{\chi}_j | \Delta\alpha \cos^2 \theta + \alpha_\perp | \tilde{\psi}_j \rangle}. \end{aligned}$$

Nous retrouvons le schéma explicite du second ordre présenté au chapitre 2 lorsque $\Delta\alpha$ et α_\perp sont choisis nuls.

3.4.7 Résultats numériques

Valeurs numériques

Les différentes valeurs des paramètres sont obtenues par des calculs de chimie quantique. Celles que nous indiquons ici sont déterminées dans [56].

B	μ	α_{\parallel}	α_{\perp}
$6,6376 \times 10^{-6}$	1,1413	20,055	8,638

Ces valeurs sont exprimées en unités atomiques. Les simulations ont été effectuées dans l'espace engendré par les dix premières harmoniques sphériques. Nous vérifions numériquement dans la section 3.4.7 que ce nombre est suffisant.

Champs obtenus et résolution des problèmes de contrôle

Les champs obtenus conduisent donc à une configuration où la masse est répartie autour des angles $\theta = 0$ et $\theta = \pi$ dans le cas du contrôle de l'alignement et autour de

$\theta = 0$ dans le cas du contrôle de l'orientation. Nous représentons les configurations aux temps 0 et T sous forme de courbes tracées en coordonnées polaires suivant l'équation :

$$r = |\psi(\theta)|^2,$$

ce qui conduit à une coupe selon le plan $x0z$ de la représentation en coordonnées sphériques de $(\phi, \theta) \mapsto |\psi(\phi, \theta)|^2$, où ϕ est la coordonnée azimutale.

Contrôle de l'alignement

Nous présentons ici les résultats du contrôle de l'alignement. Selon le champ choisi pour initier l'algorithme, les résultats obtenus à la convergence numérique diffèrent. Ceci illustre la multiplicité des points critiques de la fonctionnelle. La figure 3.11 représente le champ obtenu en choisissant le champ nul comme champ initial et la figure 3.13 représente le champ obtenu en choisissant un champ optimisant l'orientation comme champ initial. Les figures 3.12 et 3.14 représentent quant à elles les états initiaux et finaux du processus de contrôle.

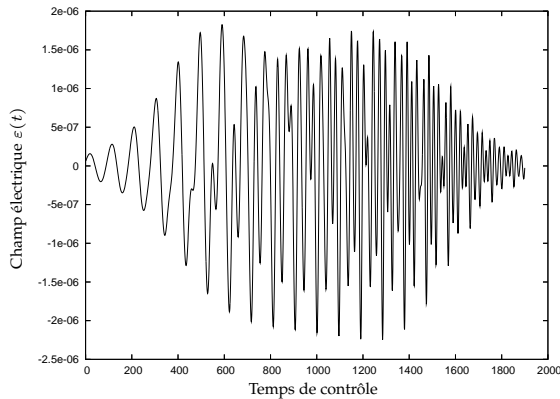


FIG. 3.11 – Champ de contrôle de l'alignement obtenu en choisissant un champ initial nul.

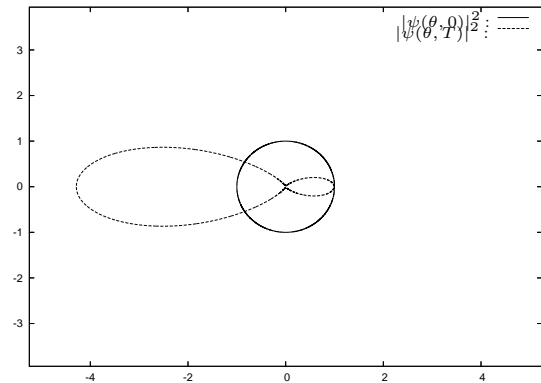


FIG. 3.12 – Comparaison entre état initial et état final.

Ces champs ont été obtenus après 1500 itérations du schéma monotone pour le cas du champ initial non nul et 3000 itérations dans le cas du champ initial nul. Le champ initial non nul choisi est un champ optimisant l'orientation.

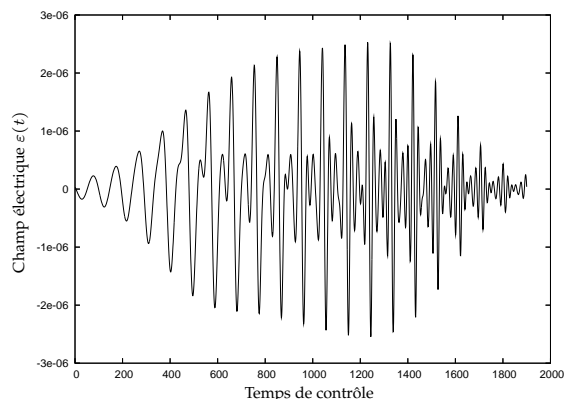


FIG. 3.13 – Champ de contrôle de l'alignement obtenu en choisissant un champ initial non nul.

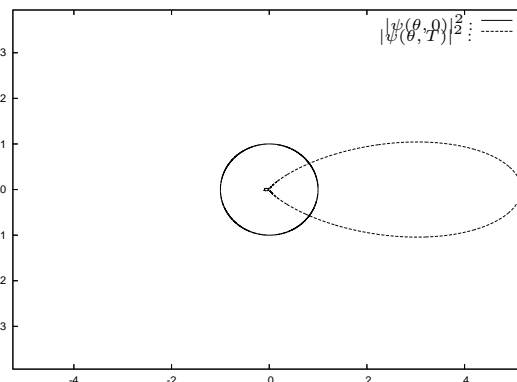


FIG. 3.14 – Comparaison entre état initial et état final. Le champ initial optimisait l'orientation autour de $\theta = 0$, ce qui se retrouve sur cette figure.

Contrôle de l'orientation

Dans le cas du contrôle de l'orientation, les résultats sont illustrés par les figures 3.15 et 3.16 représentant respectivement le champ obtenu à la convergence numérique et l'état final.

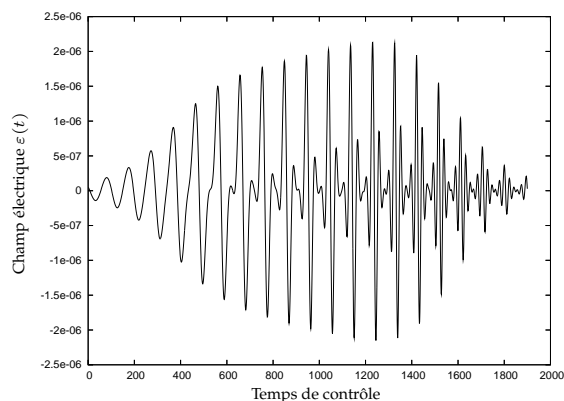


FIG. 3.15 – Champ de contrôle de l'orientation.

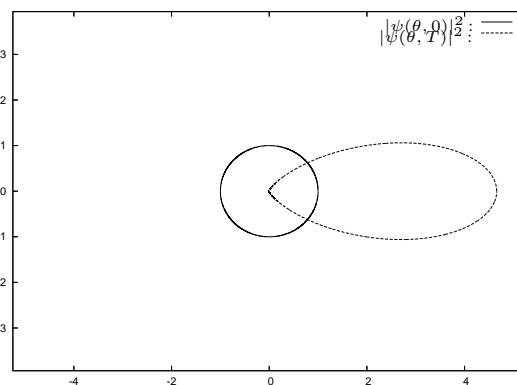


FIG. 3.16 – Comparaison entre état initial et état final. L'état final est orienté.

Ce champ a été obtenu après 3000 itérations.

Caractéristiques physiques des champs

Les champs obtenus ont donc une apparence très régulière. Pour comprendre leur signification physique, examinons l'évolution des coefficients c_J au cours du processus de contrôle. Celle-ci est représentée sur la figure 3.17 dans le cas d'une propagation par le champ optimisant l'alignement, représenté sur la figure 3.11 et sur la figure 3.18 dans le cas d'une propagation par le champ optimisant l'orientation représenté sur la figure 3.15.

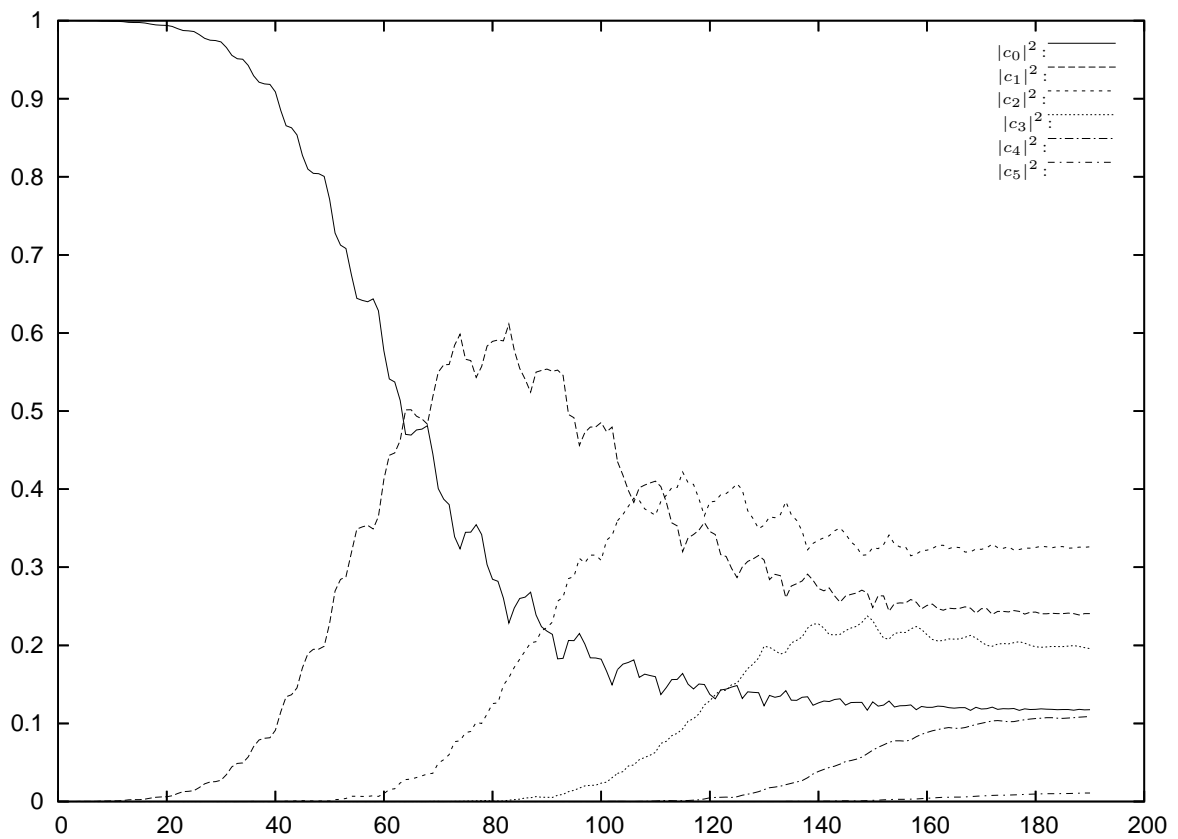


FIG. 3.17 – Répartition de la fonction d'onde selon les différentes harmoniques sphériques au cours du temps de contrôle de l'alignement. Le champ utilisé est représenté sur la figure 3.11.

Plusieurs remarques peuvent être formulées à propos de ces figures. Nous voyons tout d'abord que les harmoniques sont peuplées les unes après les autres au cours du contrôle. Il est intéressant de mettre en relation ce processus de transfert avec les fréquences

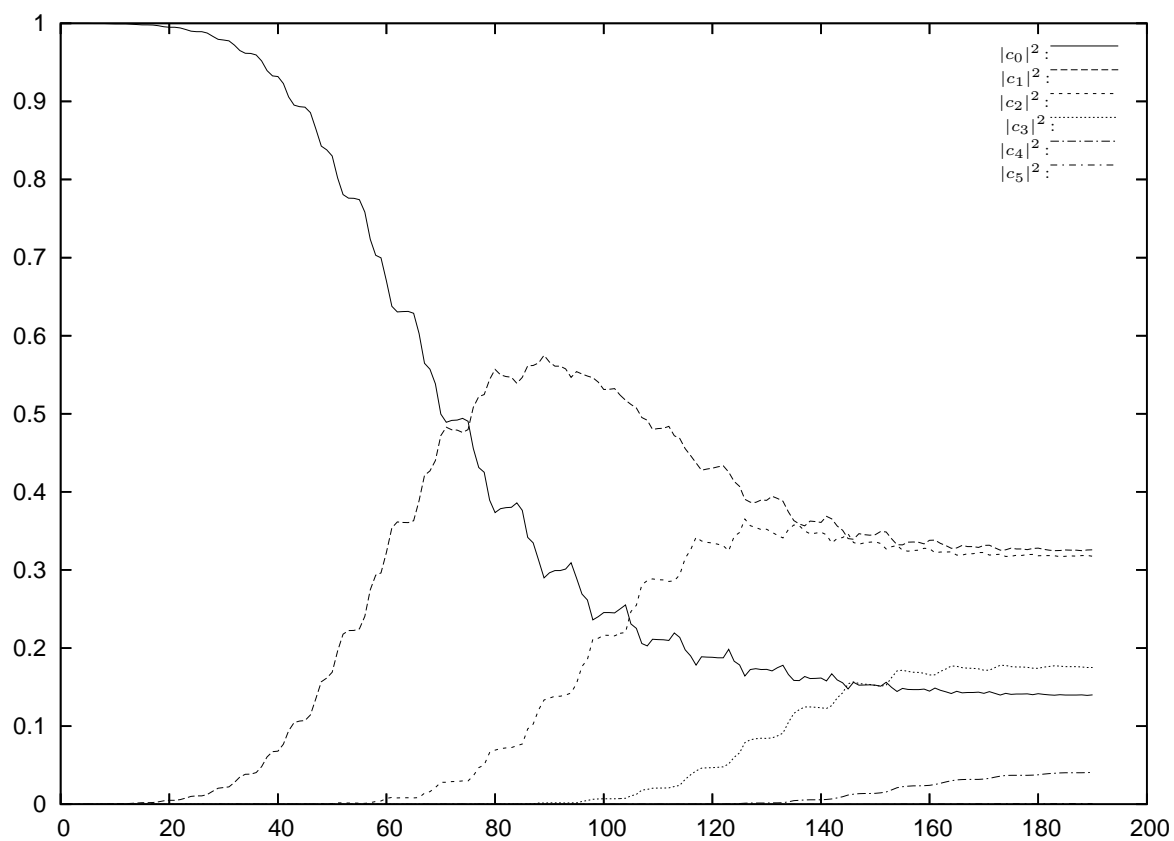


FIG. 3.18 – Répartition de la fonction d’onde selon les différentes harmoniques sphériques au cours du temps de contrôle de l’orientation. Le champ utilisé est celui représenté sur la figure 3.15

qui apparaissent peu à peu dans les champs représentés sur les figures 3.11 et 3.15. Un calcul classique de mécanique quantique¹⁵ montre que certaines fréquences de champ électrique, appelées *fréquences résonnantes*, permettent de transférer de la “matière” entre deux vecteurs propres de l’Hamiltonien interne. Ces fréquences sont proportionnelles à la différence des valeurs propres associées à ces vecteurs propres. Ce calcul appliqué à (3.2) montre que la fréquence résonnante associée à la transition entre les harmoniques J et $J + 1$ est $\frac{BJ}{\pi}$. Ce résultat se retrouve en effectuant une analyse du spectre de Fourier du champ électrique. La figure 3.19 illustre ce calcul dans le cas du champ 3.15 : l’ordonnée, $2\nu T_{rot} = \frac{2\pi\nu}{B}$ représente les fréquences présentes dans le signal. Nous ob-

¹⁵On se référera à [11] pp 1298-1305, pour les détails de ce calcul.

servons que les fréquences $\frac{B}{\pi}, 2\frac{B}{\pi}, \dots$ apparaissent petit à petit au cours du contrôle, ce qui correspond bien à l'évolution des coefficients c_J représentée sur la figure 3.18. Le processus de contrôle mis en évidence ici est un phénomène de *rotationnal ladder climbing*¹⁶, au cours duquel le champ conduit la fonction d'onde vers des états de meilleurs alignement ou orientation.

L'analyse par transformée de Fourier est réalisée à l'aide d'une transformée de Fourier à fenêtre glissante, définie par la formule :

$$\mathcal{F}(\varepsilon)(\nu, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \varepsilon(s)w(s-t)e^{-i2\pi\nu s} ds,$$

où w est une fenêtre de Tuckey-Hanning [57]. La largeur temporelle de la fenêtre est $4\frac{B}{\pi}$, soit quatre périodes de la première harmonique.

Les algorithmes monotones retrouvent donc naturellement les fréquences résonnantes associées au système.

Les figures 3.17 et 3.18 ne font pas apparaître de différences significatives entre le contrôle de l'alignement et celui de l'orientation. Il est intéressant de regarder ce que donne le calcul dans le cas de la fonctionnelle (3.6). En choisissant un état cible symétrique par rapport $\theta = \frac{\pi}{2}$, l'évolution de la répartition de la masse entre les différentes harmoniques est représentée sur la figure 3.20.

Nous voyons que les harmoniques impaires ne servent que "d'étapes intermédiaires" à l'augmentation des populations des harmoniques paires, qui sont symétriques par rapport $\theta = \frac{\pi}{2}$. Les harmoniques impaires sont en quelque sorte des passages obligés pour atteindre des états réalisant une meilleure approche de la cible. Le champ obtenu et la configuration finale sont représentés sur les figures 3.21 et 3.22.

Une différence apparaît ici entre les résultats obtenus pour les deux fonctionnelles J' et $J_{\text{alignement}}$. Pour la fonctionnelle J' , il est important que l'état final soit symétrique : la fonction cible choisie est en effet une fonction symétrique par rapport à $\frac{\pi}{2}$. Il est facile de montrer que les harmoniques sphériques impaires sont au contraire impaires par rapport à $\frac{\pi}{2}$ et sont donc orthogonales à la cible. Ceci n'est pas le cas pour la fonctionnelle $J_{\text{alignement}}$ pour laquelle un état partiellement orienté peut convenir.

Une étude du spectre de Fourier du champ représenté sur la figure 3.21 confirme ce résultat, comme le montre la figure 3.23.

¹⁶ Augmentation graduelle de l'énergie cinétique de rotation.

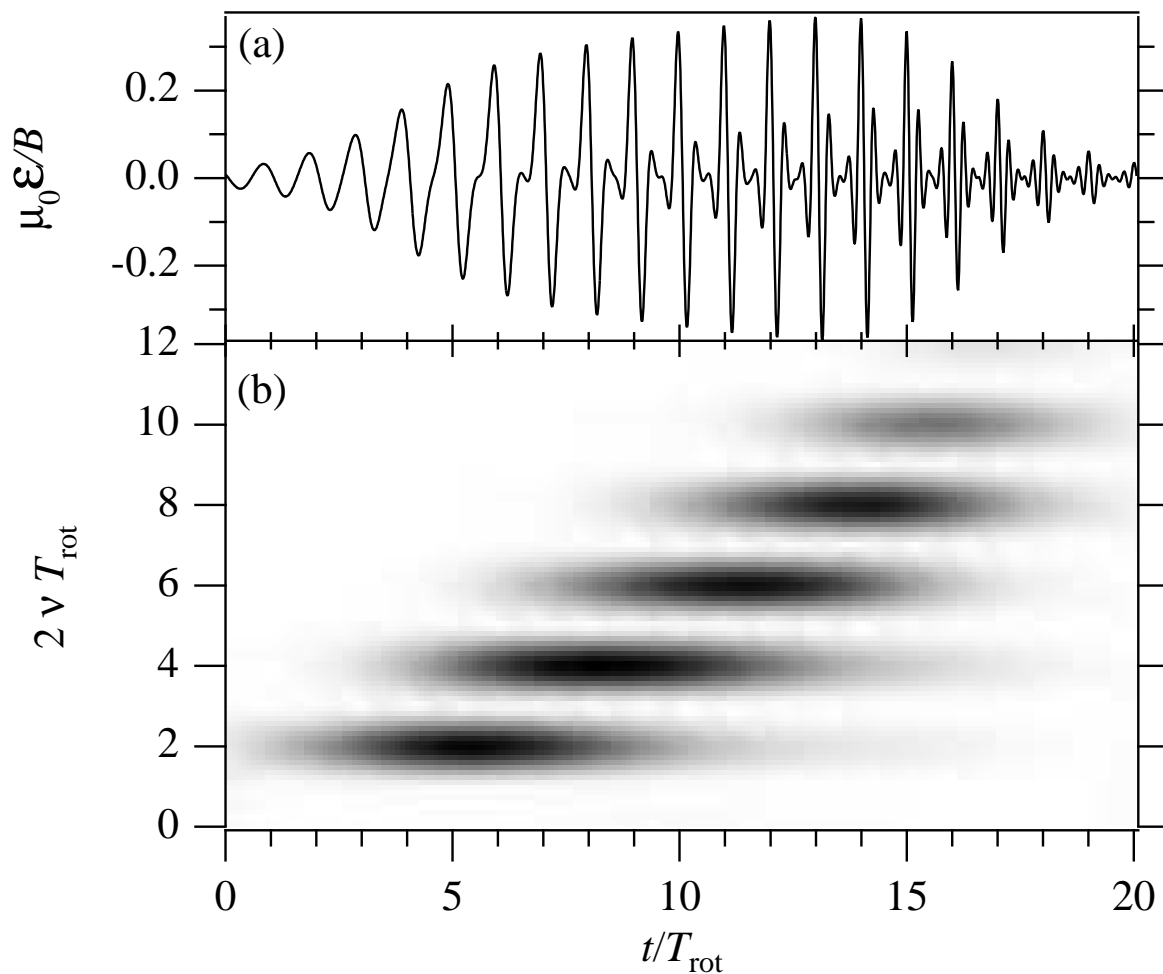


FIG. 3.19 – Les différentes fréquences résonnantes apparaissent au cours du contrôle.

Les fréquences résonnantes associées aux transitions $Y_1 \rightarrow Y_0$ et $Y_3 \rightarrow Y_2$ apparaissent en fin de contrôle et dépeuplent par conséquent ces harmoniques, en repeuplant les harmoniques Y_0 et Y_2 .

Nous constatons a posteriori que le choix d'une base de Galerkin ne contenant que dix harmoniques sphériques s'avère justifié au regard de la décroissance rapide des populations en fonction de l'harmonique.

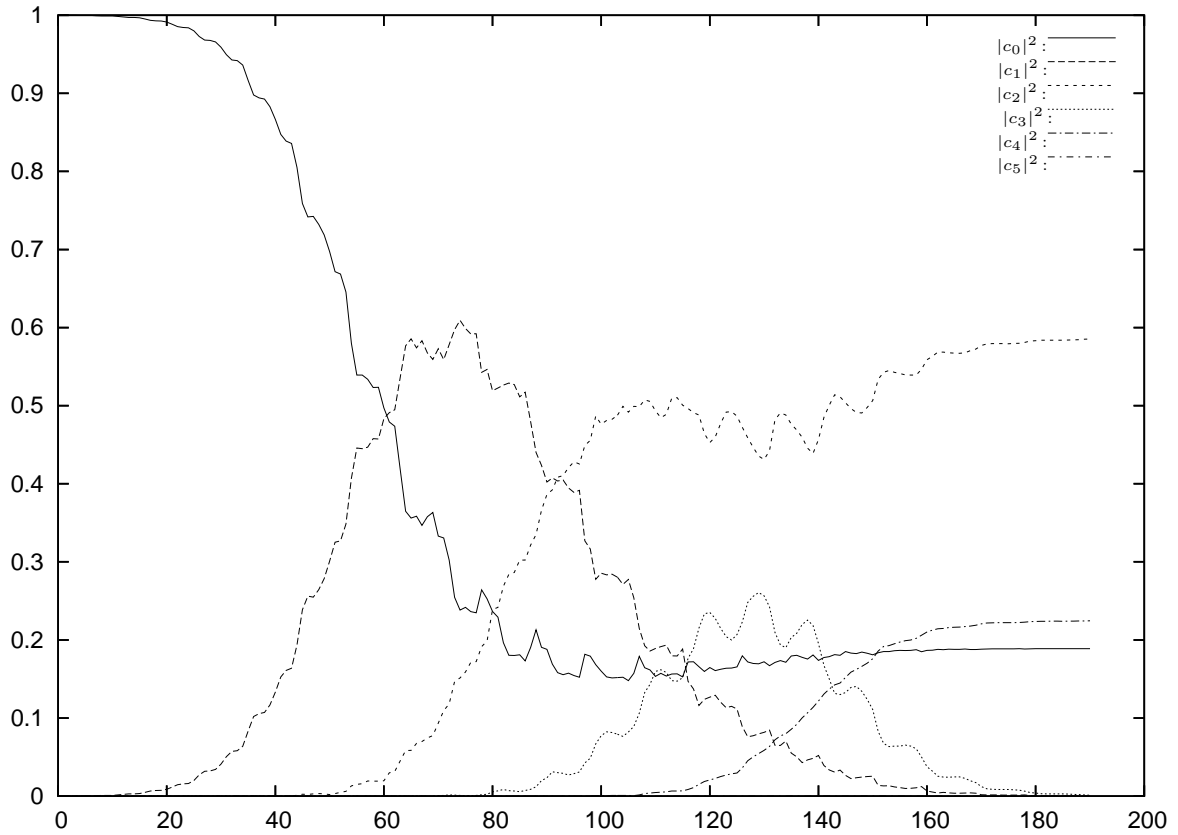


FIG. 3.20 – Répartition de la fonction d'onde selon les différentes harmoniques sphériques au cours du temps de contrôle. La fonctionnelle optimisée est (3.6), où l'état cible ψ_{cible} est symétrique par rapport $\theta = \frac{\pi}{2}$. Le champ utilisé est représenté sur la figure 3.21

Convergence numérique des algorithmes

Les courbes de convergence des fonctionnelles $J_{alignement}$ et $J_{orientation}$ correspondant aux calculs précédents sont représentées sur les figures suivantes.

La convergence est plus rapide dans le cas du contrôle de l'orientation. De plus la fonctionnelle $J_{alignement}$ possède un point critique en $\varepsilon = 0$ dont l'algorithme a plus de difficulté à sortir. D'après la figure 3.24, une soixantaine d'itérations sont en effet nécessaires pour que l'optimisation devienne significative.

Des méthodes d'accélération du calcul du type de celle présentée au paragraphe précédent (diminution du pas de temps au cours des itérations du schéma monotone) ont été testées sur cet exemple avec succès. Un affinement progressif de la discrétisation du

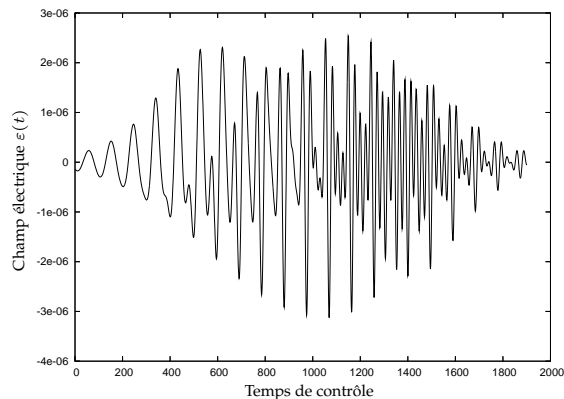


FIG. 3.21 – Champ de contrôle de l’alignement obtenu en choisissant un champ initial non nul.

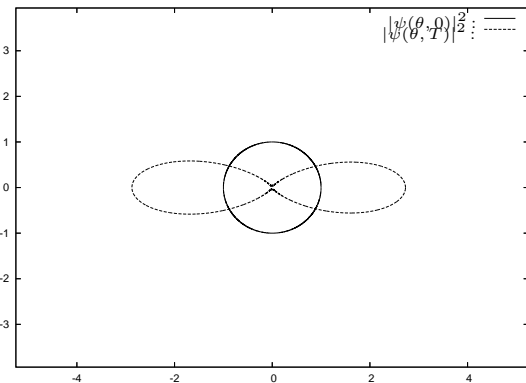


FIG. 3.22 – Comparaison entre état initial et état final. L’état final est quasiment symétrique par rapport $\theta = \frac{\pi}{2}$.

champ de contrôle a permis d’accélérer la convergence des valeurs de la fonctionnelle $J_{\text{alignement}}$.

3.4.8 Conclusions

Ce troisième exemple d’application des schémas monotones discrets permet d’élargir par plusieurs aspects le champ de leurs applications. Du point de vue du modèle physique, la contribution du champ électrique dans l’Hamiltonien n’est ici plus linéaire, les échelles de temps et d’espace ne sont plus les mêmes que dans les exemples précédents. Les résultats obtenus peuvent être interprétés d’un point de vue physique et montrent en outre que les schémas monotones s’appuient sur le phénomène connu de transition associée à une fréquence résonnante. Du point de vue mathématique les schémas ont pu être adaptés de manière à prendre en compte le terme quadratique. Une propagation dans la base des harmoniques sphériques permet d’accélérer le calcul en travaillant en petite dimension.

On ne sait pas encore produire de champ laser dans ce domaine de fréquences. En ce sens, les simulations numériques revêtent un intérêt essentiel puisqu’elles donnent accès à des résultats précédant l’expérience.

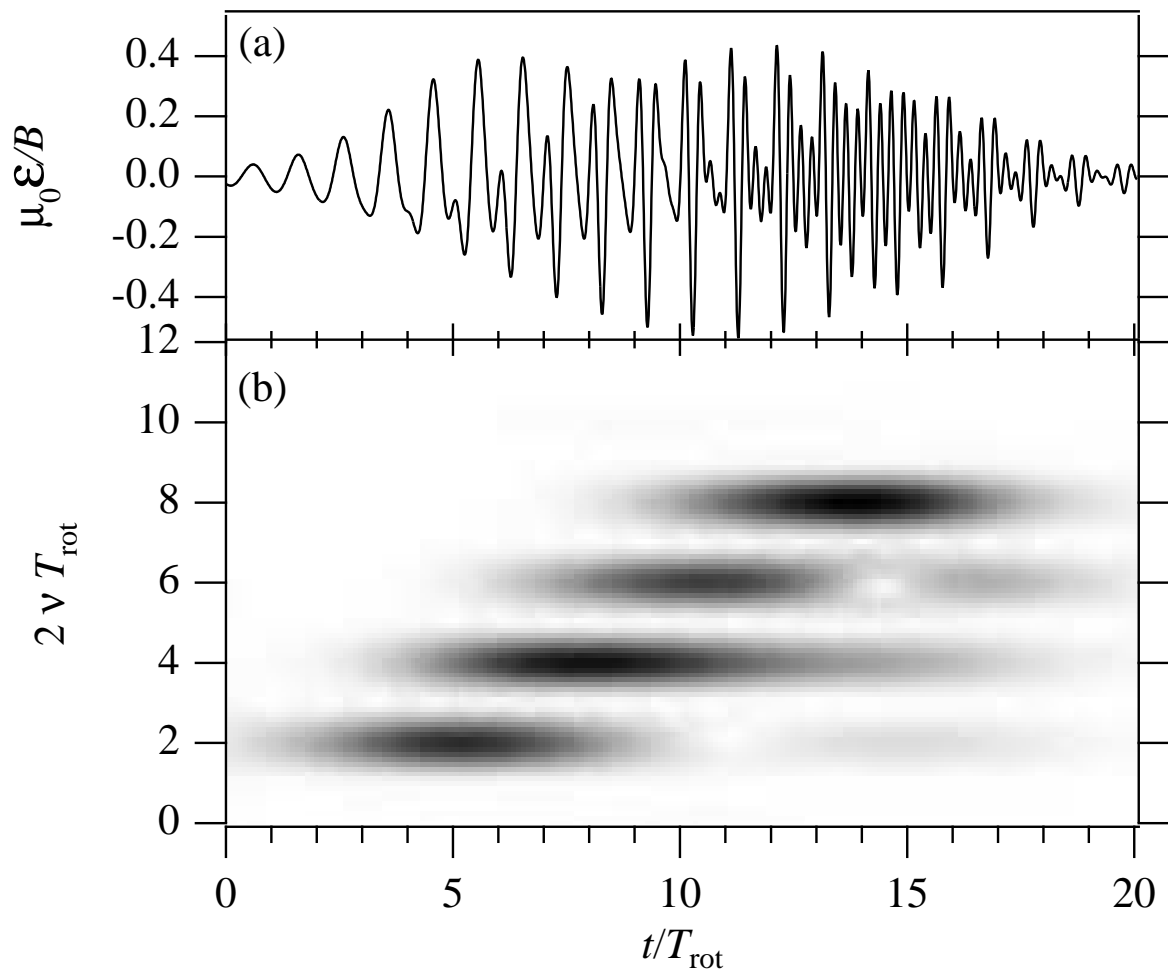


FIG. 3.23 – Les différentes fréquences résonnantes apparaissent au cours du contrôle. Les fréquences favorisant les transitions $Y_1 \rightarrow Y_0$ et $Y_3 \rightarrow Y_2$ sont “rallumées” en fin de processus.

3.5 Perspectives

Ces trois exemples permettent d’étendre à de nouveaux problèmes de contrôle les algorithmes monotones discrets. Quelques pistes peuvent être suggérées pour des travaux ultérieurs.

Le problème du déplacement d’une particule entre deux puits tel qu’il est présenté dans ce chapitre ne fait intervenir que la partie discrète de l’Hamiltonien interne. Le recours à l’effet tunnel mis en évidence n’entraîne que des oscillations entre les harmoniques

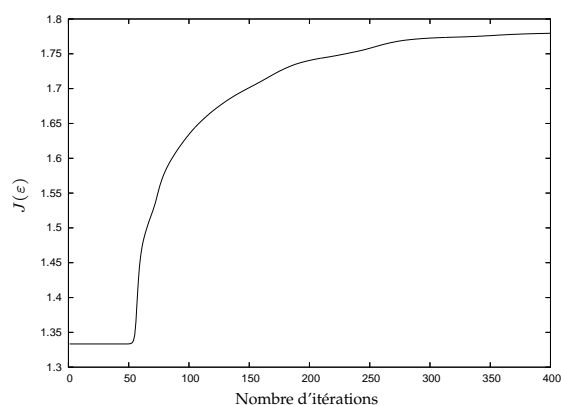


FIG. 3.24 – Evolution de la fonctionnelle de coût $J_{\text{alignement}}$ en fonction du nombre d'itérations. Le calcul a été effectué en choisissant comme champ électrique initial le champ nul.

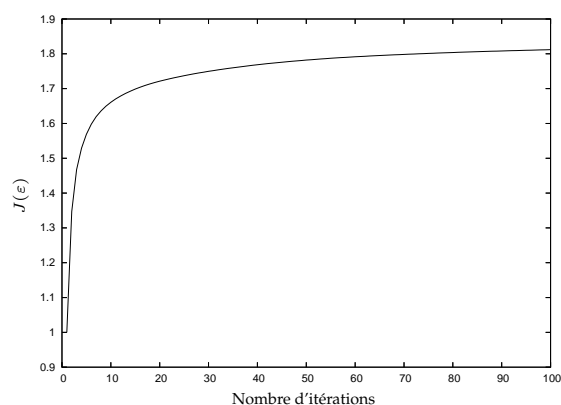


FIG. 3.25 – Evolution de la fonctionnelle de coût $J_{\text{orientation}}$ en fonction du nombre d'itérations.

correspondantes. Il serait intéressant de mettre en évidence des processus de transfert utilisant des harmoniques du spectre continu, ce qui peut être favorisé par une augmentation de la distance entre les deux puits.

Le problème de l'orientation moléculaire peut être approfondi en ajoutant un terme de vibration dans l'Hamiltonien. La molécule ne serait alors plus considérée comme un rotateur rigide, mais comme un oscillateur harmonique en rotation. La difficulté de cette nouvelle approche réside essentiellement dans le coût de calcul supplémentaire dû au raffinement du modèle. De plus, les harmoniques de l'Hamiltonien interne ne pourraient plus être calculées explicitement et seraient en conséquence déterminées par un pré-calcul.

Chapitre 4

Parallélisation des schémas monotones

Résumé

Les schémas monotones sont maintenant adaptés à une architecture parallèle permettant une accélération du calcul. Cette adaptation est effectuée dans le cadre général des schémas pararéels présentés à la section 3.10. Par une utilisation convenable de deux propageurs, l'un fin et l'autre grossier, un découpage de l'intervalle de contrôle $[0, T]$ en sous-intervalles $\{[T_n, T_{n+1}]\}_{n=0, \dots, N-1}$ permet de réaliser les calculs coûteux en parallèle. L'objet principal du schéma présenté est de définir des points initiaux des équations d'évolution restreintes à ces sous-intervalles. Sa conception repose sur une nouvelle interprétation des schémas monotones que nous présentons à la section 4.3. L'algorithme et les résultats numériques sont présentés à la section 4.4.

Sommaire

4.1	Introduction	104
4.2	Schémas en temps pararéel	104
4.2.1	Cadre général des schémas en temps pararéel	105
4.2.2	Schémas en temps pararéel	106
4.2.3	Préconditionneur pararéel	107
4.2.4	Problème du couplage avec les schémas monotones	110

4.3	Schémas de tracking à horizon fini	110
4.3.1	Schémas de tracking	111
4.3.2	Tracking à horizon fini et pénalisation des champs	112
4.4	Parallélisation des schémas monotones	113
4.4.1	Valeurs initiales et trajectoires de référence	113
4.4.2	Pénalisation du champ	115
4.4.3	Réduction du temps de calcul	117
4.4.4	Algorithme	118
4.4.5	Coût de calcul	119
4.4.6	Résultats numériques	119
4.4.7	Convergence du schéma	121

4.1 Introduction

Récemment introduits, les schémas en temps pararéel sont des méthodes itératives efficaces de résolution numérique des équations d'évolution en temps qui mettent à profit une architecture parallèle. Lorsqu'elles sont couplées à d'autres méthodes itératives, un gain de temps peut être obtenu, justifiant la démarche pararéelle : calculer en temps réel les paramètres de la parallélisation. L'idée sous-jacente aux travaux de ce chapitre est donc de coupler convenablement les itérations de ces schémas et celles des schémas monotones.

4.2 Schémas en temps pararéel

Les schémas en temps pararéel, s'ils suivent des idées générales identiques, donnent lieu à des démarches variées et adaptées à plusieurs classes de problèmes. Nous décrivons dans cette section ces caractéristiques communes et les différentes réalisations auxquelles elles donnent lieu.

4.2.1 Cadre général des schémas en temps pararéel

Découpage en temps

Considérons l'intervalle de temps $[0, T]$, sur lequel doit être résolue une équation d'évolution aux dérivées partielles dans espace de Hilbert \mathcal{H} :

$$\partial_t u + Au = f, \quad (4.1)$$

avec une condition initiale $u(0) = u_0$. Les conditions aux limites ne sont pas précisées ici : dans le cadre du contrôle quantique où nous souhaitons appliquer les schémas en temps pararéel, les fonctions considérées seront de limites nulles à l'infini.

Nous souhaitons tirer profit d'une architecture parallèle. Pour ce faire, fixons un entier N et introduisons une suite finie de fonctions $(\lambda_n)_{n=0, \dots, N-1}$ avec $\lambda_0 = u_0$. Considérons alors une partition de l'intervalle $[0, T]$ en N sous-intervalles $\{[T^n, T^{n+1}]\}_{n=0, \dots, N-1}$ sur lesquels les équations aux dérivées partielles suivantes sont résolues en parallèle :

$$\partial_t u_n + Au_n = f_n, \quad (4.2)$$

avec $f_n = f|_{[T^n, T^{n+1}]}$, $u(T^n) = \lambda_n$ et des conditions aux limites identiques à celles de (4.1). La collection des solutions alors obtenue coïncide avec $(u|_{[T^n, T^{n+1}]})_{n=0, \dots, N-1}$ lorsque :

$$u_n(T^{n+1, -}) = \lim_{\delta > 0, \delta \rightarrow 0} u_n(T^{n+1} - \delta) = \lambda_{n+1} \quad (4.3)$$

pour $n = 0, \dots, N - 1$. Les schémas en temps pararéel sont des méthodes itératives de calcul des fonctions $(\lambda_n)_{n=1, \dots, N-1}$.

L'idée sous-jacente aux schémas en temps pararéel est que les calculs effectués sur les sous-intervalles $\{[T^n, T^{n+1}]\}_{n=0, \dots, N-1}$ peuvent être mis en œuvre de manière indépendante, donc simultanément et en parallèle. Un gain de temps de l'ordre du nombre de sous-intervalles N est donc envisageable dès lors que la suite de fonctions $(\lambda_n)_{n=1, \dots, N-1}$ est convenablement choisie.

Propagateurs

Le cadre fixé pour construire un algorithme permettant de déterminer la suite de fonctions $(\lambda_n)_{n=0, \dots, N-1}$ est le suivant : les calculs de propagations sont effectués à chaque itération en utilisant deux propagateurs, un propagateur grossier G et un propagateur

fin F . Le propagateur G est associé à (4.1). Ses calculs sont peu coûteux et peuvent donc être réalisés sur l'intervalle $[0, T]$ entier. Nous notons alors :

$$u(t) \approx G(t, t')u(t'), \quad (4.4)$$

où $G(t, t')$ représente le propagateur associé à l'équation (4.2) sur l'intervalle $[t, t']$. Le propagateur fin réalise à l'inverse des calculs précis et coûteux et est en conséquence utilisé exclusivement en parallèle, sur les sous-intervalles $\{[T^n, T^{n+1}]\}_{n=0, \dots, N-1}$ pour résoudre les équations (4.2). Pour ce propagateur F , définissons, en suivant une notation analogue à G :

$$u_n(t) \approx F(t, t')u_n(t'), \quad (4.5)$$

pour $t, t' \in [T^n, T^{n+1}]^2$, en ayant en mémoire que l'approximation est meilleure dans (4.5) que dans (4.4). Les résultats de ces calculs sont utiles pour déterminer $(\lambda_n)_{n=0, \dots, N-1}$ et résoudre approximativement (4.1). Nous exposons dans les sections suivantes la démarche suivie pour atteindre cet objectif et satisfaire (4.3).

4.2.2 Schémas en temps pararéel

Plusieurs procédures ont initialement été proposées [58, 59, 60] pour construire une suite $(\lambda_n^k)_{n=0, \dots, N-1}^{k \in \mathbb{N}}$ qui converge vers une solution $(\lambda_n)_{n=0, \dots, N-1}$ de (4.3). Présentons succinctement celle décrite dans [60]. La suite $(\lambda_n^k)_{n=0, \dots, N-1}^{k \in \mathbb{N}}$ est obtenue en résolvant itérativement les équations suivantes :

$$\begin{aligned} \lambda_0^{k+1} &= u_0 \\ \lambda_{n+1}^{k+1} &= G(T_n, T_{n+1})\lambda_n^{k+1} + F(T_n, T_{n+1})\lambda_n^k - G(T_n, T_{n+1})\lambda_n^k. \end{aligned} \quad (4.6)$$

Cet algorithme respecte bien les règles associées aux propagateurs : les calculs fins sont indépendants et peuvent donc être réalisés en parallèle. La convergence de ce schéma est alors donnée par le résultat suivant :

Théorème 6. *Le schéma (4.6) est d'ordre k dans le sens où il existe une constante c_k indépendante du pas de temps ΔT telle que :*

$$\forall n, 0 \leq n \leq N-1, \quad |\lambda_n^k - u(T_n)| + \max_{t \in [T_n, T_{n+1}]} |u_n^k(t) - u(t)| \leq c_k (\Delta T)^k$$

On se référera à [58] pour de plus amples détails sur ce résultat. Pour d'autres résultats sur la stabilité et les propriétés d'approximation du schéma en temps pararéel (4.6), on pourra se référer à [61, 62, 63]. Ce schéma a été adapté à divers problèmes d'évolution : problèmes paraboliques (linéaires ou non) [58], problèmes de dynamique moléculaire [64] et problèmes couplés à des décompositions de domaines en espace [65].

4.2.3 Préconditionneur pararéel

Nous supposons désormais que les propagateurs F et G conservent les normes des vecteurs propagés. Pour coupler un schéma en temps pararéel avec un problème de contrôle, une première idée consiste à résoudre les équations d'évolution des schémas d'optimisation en suivant une démarche analogue à (4.6). Cette idée a été développée dans [66, 67].

Une autre approche, consiste à voir dans le schéma en temps pararéel un preconditionneur dont il est possible de combiner les itérations à celles d'un schéma d'optimisation lié au problème de contrôle. Cette idée s'appuie sur des résultats présentés par Lions dans [68]. La démarche consiste plus précisément à introduire dans la fonctionnelle de coût les sauts induits par la différence des deux propagateurs. Présentons-la sur un exemple simple de contrôle linéaire :

$$\begin{cases} \partial_t u + Au = Bv \\ u(0) = u_0 \end{cases}$$

où v est le terme de contrôle appartenant à un espace V et B un opérateur de $\mathcal{L}(V; U')$. Cette équation d'évolution est complétée par une fonctionnelle de coût :

$$J(v) = \beta \|u(T) - u_{cible}\|^2 + \int_0^T \|v(t)\|_V^2 dt,$$

où u_{cible} représente un état cible et β est un réel positif.

Pour introduire la méthodologie associée aux schémas en temps pararéels, définissons, de même que précédemment l'ensemble de fonctions $\{u_n\}_{n=0\dots N-1}$ solutions de :

$$\begin{cases} \partial_t u_n + Au_n = Bv_n \\ u_n(T_n^+) = \lambda_n, \end{cases}$$

avec $\lambda_0 = u_0$. Ces équations sont complétées par une fonctionnelle de coût associée au problème parallèle :

$$J_\gamma(v, \Lambda) = \beta \|u(T) - u_{cible}\|^2 + \frac{1}{\gamma} \sum_{n=1}^{N-1} \|u_{n-1}(T_n^-) - \lambda_n\|^2 + \int_0^T \|v(t)\|_V^2 dt,$$

où $\Lambda = \{\lambda_1, \dots, \lambda_{N-1}\}$ et γ un réel positif. L'idée est alors d'appliquer la méthode du gradient pour optimiser cette fonctionnelle. Celle-ci nécessite d'introduire les états adjoints définis par les équations suivantes :

$$\begin{cases} \partial_t p_{N-1} + A^* p_{N-1} = 0 & \text{sur } [T_{N-1}, T_N] \\ p_{N-1}(T) = \beta(u_{N-1}(T) - u_{cible}) \end{cases}$$

$$\begin{cases} \partial_t p_n + A^* p_n = 0 & \text{sur } [T_n, T_{n+1}], n < N - 1 \\ p_n(T_{n+1}^-) = \frac{1}{\gamma}(u_n(T_{n+1}^-) - \lambda_{n+1}). \end{cases} \quad (4.7)$$

Un calcul montre alors que la variation δJ_γ de J_γ peut s'écrire sous la forme suivante :

$$\delta J_\gamma(v, \Lambda)(\delta v, \delta \Lambda) = \sum_{n=0}^{N-1} \int_{T_n}^{T_{n+1}} (v_n + B^* p_n, \delta v_n)_V + \sum_{n=1}^{N-1} (p_n(T_n^+) - p_{n-1}(T_n^-), \delta \lambda_n).$$

Une procédure d'optimisation peut par exemple prendre la forme itérative suivante :

$$\begin{cases} v_n^{k+1} = v_n^k - \rho(v_n^k + B^* p_n^k) & \text{sur } [T_n, T_{n+1}], n = 0, \dots, N - 1 \\ \lambda_n^{k+1} = \lambda_n^k - \rho(p_n^k(T_n^+) - p_{n-1}^k(T_n^-)) & n = 1, \dots, N - 1. \end{cases} \quad (4.8)$$

Pour formaliser cette procédure, écrivons le gradient de J_γ par rapport à la variable Λ sous forme matricielle. On a :

$$\Delta p = \frac{1}{\gamma} M^*(M\Lambda + p_i) + p_f,$$

avec :

$$\Delta p = \begin{pmatrix} p_1(T_1^+) - p_0(T_1^-) \\ p_2(T_2^+) - p_1(T_2^-) \\ \vdots \\ p_{N-1}(T_{N-1}^+) - p_{N-2}(T_{N-1}^-) \end{pmatrix}, \quad \Lambda = \begin{pmatrix} \lambda_1 \\ \lambda_2 \\ \vdots \\ \lambda_{N-1} \end{pmatrix},$$

$$p_i = \begin{pmatrix} F(\lambda_0) \\ 0 \\ \vdots \\ 0 \end{pmatrix}, \quad p_f = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ \vdots \\ F^{-1}(u_{cible}) \end{pmatrix},$$

et M^* est l'adjoint de la matrice formelle M définie par :

$$M = \begin{pmatrix} Id & 0 & 0 & \dots & \dots \\ -F_1 & Id & 0 & \dots & \dots \\ 0 & -F_2 & Id & 0 & \dots \\ \vdots & 0 & \ddots & \ddots & \vdots \\ \vdots & \vdots & 0 & -F_{n-1} & Id \end{pmatrix},$$

où $F_n = F(T_n, T_{n+1})$.

L'équation (4.8) s'écrit alors :

$$\Lambda^{k+1} = \Lambda^k - \frac{\rho}{\gamma} M^* (M \Lambda^k + p_i) + p_f. \quad (4.9)$$

En supposant l'existence d'une limite Λ^∞ à cette suite et en notant $err^k = \Lambda^k - \Lambda^\infty$, on obtient :

$$err^{k+1} = (Id - \frac{\rho}{\gamma} M^* M) err^k. \quad (4.10)$$

Pour accélérer ce calcul en profitant d'une structure parallèle, on peut alors de préconditionner (4.9) en y insérant un inverse grossier de $M^* M$. Cette approche a été couplée

à un schéma d'optimisation par gradient sur un problème de contrôle distribué associé à une équation parabolique linéaire [60].

4.2.4 Problème du couplage avec les schémas monotones

La méthode exposée à la section précédente a été testée sur le problème de contrôle quantique défini par une équation de Schrödinger et une fonctionnelle de la forme :

$$J(\varepsilon, \Lambda) = \|\psi_{cible} - \psi_{N-1}(T)\|^2 + \frac{1}{\beta} \sum_{n=0}^{N-2} \|\lambda_{n+1} - \psi_n(T_{n+1}^-)\| - \sum_{n=0}^{N-1} \alpha \int_{T_n}^{T_{n+1}} \varepsilon_n^2(t) dt,$$

où les fonctions λ_n , ψ_n et ε_n sont liées par les relations :

$$\begin{cases} i\partial_t \psi_n(x, t) = [H - \mu(x)\varepsilon_n(t)]\psi_n(x, t) & \text{sur } [T_n, T_{n+1}] \\ \psi_n(x, T_n^+) = \lambda_n(x), \end{cases} \quad (4.11)$$

où H est l'Hamiltonien interne et μ le moment dipolaire. Ces travaux n'ont pour l'instant pas abouti à des résultats satisfaisants. Un obstacle significatif apparaissant lors des tests numériques est l'absence de sens physique de l'adjoint sur les $N - 1$ premiers sous-intervalles de temps. En effet, celui-ci n'est pas directement associé à un état cible sur ces sous-intervalles. Il propage simplement une information sur les sauts comme le montre l'équation (4.7) et ne coïncide ainsi avec l'adjoint du problème initial séquentiel que sur le dernier intervalle. De plus, les points critiques de cette fonctionnelle ne sont pas continus dès que le coefficient α n'est pas nul, ce qui pose des problèmes lors de la propagation séquentielle des champs obtenus. Ces observations nous conduisent à un nouveau schéma en temps pararéel, mieux adapté aux schémas monotones.

4.3 Schémas de tracking à horizon fini

Nous présentons dans cette section une approche des problèmes de contrôle qui conduit à une nouvelle interprétation des schémas monotones.

4.3.1 Schémas de tracking

L'objet des schémas de *tracking* n'est pas tout à fait le même que celui des schémas présentés jusqu'ici. Les algorithmes exposés précédemment ont pour objectif la minimisation de certaines fonctionnelles. Les schémas de tracking sont des schémas locaux qui visent, quant à eux, à diminuer à chaque pas de temps la distance du vecteur propagé à une trajectoire de référence.

Expliquons la démarche proposée par cette approche sur un exemple simple. Considérons un système quantique décrit par une fonction d'onde ψ soumis à un champ électrique ε . Son évolution est régie par une équation de Schrödinger :

$$\begin{cases} i\partial_t\psi(x, t) &= [H - \mu(x)\varepsilon(t)]\psi(x, t) \\ \psi(x, 0) &= \psi_0(x), \end{cases} \quad (4.12)$$

où les notations sont celles de la section 4.2.4. Considérons également un autre système quantique ψ_{ref} dont l'évolution est elle décrite par :

$$i\partial_t\psi_{ref}(x, t) = [H - \mu(x)\varepsilon_{ref}(t)]\psi_{ref}(x, t), \quad (4.13)$$

où ε_{ref} est un champ de référence. Le point initial est fixé arbitrairement et importe peu dans ce qui suit. La trajectoire $\{\psi_{ref}(t)\}_{t \in \mathbb{R}^+}$, notée simplement ψ_{ref} dans la suite, est une trajectoire de référence que l'on cherche à approcher par ψ . L'objet d'un algorithme de *tracking*¹⁷ est de déterminer ε de telle sorte que la distance entre ψ et ψ_{ref} soit une fonction décroissante du temps. Définissons alors la fonction ϕ_ε suivante :

$$\phi_\varepsilon : t \mapsto \|\psi(t) - \psi_{ref}(t)\|^2.$$

Cette fonction est appelée *Fonction de Lyapounov*. La dérivée de cette fonction peut être calculée par l'intermédiaire de (4.12) et (4.13) :

$$\phi'_\varepsilon : t \mapsto 2(\varepsilon(t) - \varepsilon_{ref}(t))\Im\langle\psi_{ref}(t)|\mu|\psi(t)\rangle.$$

Plusieurs choix de fonction ε existent pour remplir l'objectif du tracking. Un exemple simple est donné par :

$$\varepsilon(t) = \varepsilon_{ref} + \rho\Im\langle\psi_{ref}(t)|\mu|\psi(t)\rangle, \quad (4.14)$$

¹⁷Le mot *tracking* peut être entendu comme "poursuite".

avec ρ un nombre positif. La fonction ϕ_ε correspondante est décroissante par rapport au temps. Un problème posé par cette méthode est qu'elle ne conduit pas forcément à une convergence satisfaisante. Il arrive en effet que la limite obtenue, soit non nulle

$$\lim_{t \rightarrow \infty} \phi_\varepsilon(t) \neq 0.$$

Ce cas se présente par exemple lorsque ε_{ref} est nul et que ψ_{ref} et ψ sont μ -orthogonaux pour tout temps. Le contrôle défini par (4.14) est alors nul et la valeur de ϕ_ε reste constante et de valeur non nulle. Une méthode permettant d'éviter ce type de situation consiste à choisir une trajectoire de référence suffisamment variable au cours du temps pour que $\Im\langle\psi_{ref}(t)|\mu|\psi(t)\rangle$ soit non identiquement nul. Pour ce faire, un champ ε_{ref} contenant suffisamment de composantes de Fourier¹⁸ doit être choisi, de telle sorte que la trajectoire de référence ψ_{ref} ne reste pas dans un sous-espace strict trop petit.

Remarquons enfin que pour un problème de contrôle donné, peu de restrictions existent sur le champ ε_{ref} . En effet, l'objectif est souvent d'atteindre une trajectoire de manière asymptotique, sans que la manière d'y parvenir soit pour autant soumise à contraintes. On se référera à [14] pour plus de détails concernant la convergence de tels algorithmes. Les méthodes de tracking s'appliquent à des problèmes à horizon infini, c'est-à-dire où les temps de contrôle ne sont pas connus a priori. Dans les problèmes rencontrés au cours de cette thèse, les contrôles sont recherchés sur $[0, T]$, si bien qu'une adaptation s'avère nécessaire pour concilier ces deux approches d'un problème de contrôle.

4.3.2 Tracking à horizon fini et pénalisation des champs

Une démarche proposée pour traiter des problèmes de contrôle en temps fini par tracking est alors la suivante[14]. Fixons un état initial ψ_0 et un état cible ψ_{cible} à atteindre en un temps T . L'algorithme consiste alors à propager successivement ψ_0 de 0 à T et ψ_{cible} de manière rétrograde de T à 0. Les champs successifs utilisés pour réaliser ces propagations sont obtenus en suivant une démarche de type tracking en poursuivant la trajectoire obtenue à la propagation précédente. Dans cette approche, le "tracking" s'effectue donc aussi bien dans le sens direct que dans le sens rétrograde. La notation ψ_{ref} est donc abandonnée. Notons donc χ la fonction en cours de propagation rétrograde

¹⁸On se référera au chapitre 3 section 3.4.7.

par un champ désormais noté $\tilde{\varepsilon}$ à partir de ψ_{cible} .

Pour être plus proche des schémas monotones, il est utile d'ajouter une pénalisation du champ au cours du temps. La fonction de Lyapounov doit alors être modifiée et peut par exemple être redéfinie par :

$$\phi_{\varepsilon, \tilde{\varepsilon}}(t) = \|\psi(t) - \chi(t)\|^2 + \int_0^t \alpha(s) \varepsilon^2(s) ds + \int_t^T \alpha(s) \tilde{\varepsilon}^2(s) ds,$$

où α est une fonction positive sur l'intervalle $[0, T]$. La dérivée de cette fonction est alors au temps t :

$$\phi'_{\varepsilon, \tilde{\varepsilon}}(t) = 2(\varepsilon(t) - \tilde{\varepsilon}(t)) \mathfrak{S} \langle \chi(t) | \mu | \psi(t) \rangle + \alpha(t) (\varepsilon^2(t) - \tilde{\varepsilon}^2(t)). \quad (4.15)$$

Cette fonction doit permettre de concevoir des champs tels que les propagations directes et rétrogrades minimisent l'écart entre les trajectoires de ψ et χ : de même que dans la section 4.3.1, nous constatons que la monotonie de ϕ est directement déterminée par les champs ε et $\tilde{\varepsilon}$. En conséquence, le champ ε peut être déterminé au cours de la propagation directe sous la condition :

$$\phi'_{\varepsilon, \tilde{\varepsilon}}(t) \leq 0 \quad (4.16)$$

et le champ $\tilde{\varepsilon}$ peut être déterminé lors de la propagation rétrograde par

$$\phi'_{\varepsilon, \tilde{\varepsilon}}(t) \geq 0. \quad (4.17)$$

Dans [69], on montre l'équivalence entre ce dernier algorithme et les schémas monotones.

4.4 Parallélisation des schémas monotones

4.4.1 Valeurs initiales et trajectoires de référence

L'interprétation en terme de tracking des schémas monotones permet de concevoir une parallélisation mieux adaptée à ces schémas. Les termes de la suite $\Lambda = (\lambda_n)_{n=1 \dots N-1}$ définie à la section 4.2 sont désormais vus non seulement comme des points initiaux des sous-problèmes pararéels (4.11), mais aussi comme des cibles et des points de départ de trajectoires de références qu'il s'agit d'approcher. L'avantage de cette interprétation est

que les sous problèmes pararéels sont exactement de la même forme que le problème de contrôle associé à la fonctionnelle J définie par :

$$J(\varepsilon) = 2\Re\langle\psi_{cible}|\psi(T)\rangle - \int_0^T \alpha(t)\varepsilon^2(t)dt. \quad (4.18)$$

La question du choix des valeurs successives de la suite $(\Lambda^k)_{k \in \mathbb{N}}$ peut donc être abordée sous un autre jour. Supposons alors avoir calculé deux trajectoires sur l'intervalle de contrôle complet $[0, T] : (\psi_G(t))_{t \in [0, T]}$ obtenue par propagation directe de ψ_0 par un champ ε et $(\chi_G(t))_{t \in [0, T]}$ obtenue¹⁹ par propagation rétrograde de ψ_{cible} par un champ $\tilde{\varepsilon}$. D'après la section 4.3, une optimisation réalisée par les schémas monotones sur les champs ε et $\tilde{\varepsilon}$ tend à rapprocher ces deux trajectoires. L'idée est alors de choisir les points λ_n sur une trajectoire déduite des deux précédentes. Celle-ci peut par exemple être définie par :

$$\lambda(t) = \frac{(T-t)\psi_G(t) + t\chi_G(t)}{\|(T-t)\psi_G(t) + t\chi_G(t)\|},$$

où la division par la norme permet de garantir que cette nouvelle trajectoire reste sur la sphère unité de l'espace des configurations. Les points λ_n sont alors définis par :

$$\lambda_n = \lambda(T_n) = \frac{(T-T_n)\psi_G(T_n) + T_n\chi_G(T_n)}{\|(T-T_n)\psi_G(T_n) + T_n\chi_G(T_n)\|}. \quad (4.19)$$

Dans le cas de sous-intervalles égaux, c'est-à-dire tels que :

$$T_n = \frac{n}{N}T, \quad (4.20)$$

la formule (4.19) devient alors :

$$\begin{aligned} \lambda_n &= \frac{(N-n)\psi_G(T_n) + n\chi_G(T_n)}{\|(N-n)\psi_G(T_n) + n\chi_G(T_n)\|} \\ &= \frac{(1-\delta_n)\psi_G(T_n) + \delta_n\chi_G(T_n)}{\|(1-\delta_n)\psi_G(T_n) + \delta_n\chi_G(T_n)\|}, \end{aligned} \quad (4.21)$$

où $\delta_n = \frac{n}{N}$. La figure 4.1 représente schématiquement les calculs effectués au cours d'une itération.

¹⁹Les notations ψ_G et χ_G sont justifiées à la section 4.4.3.

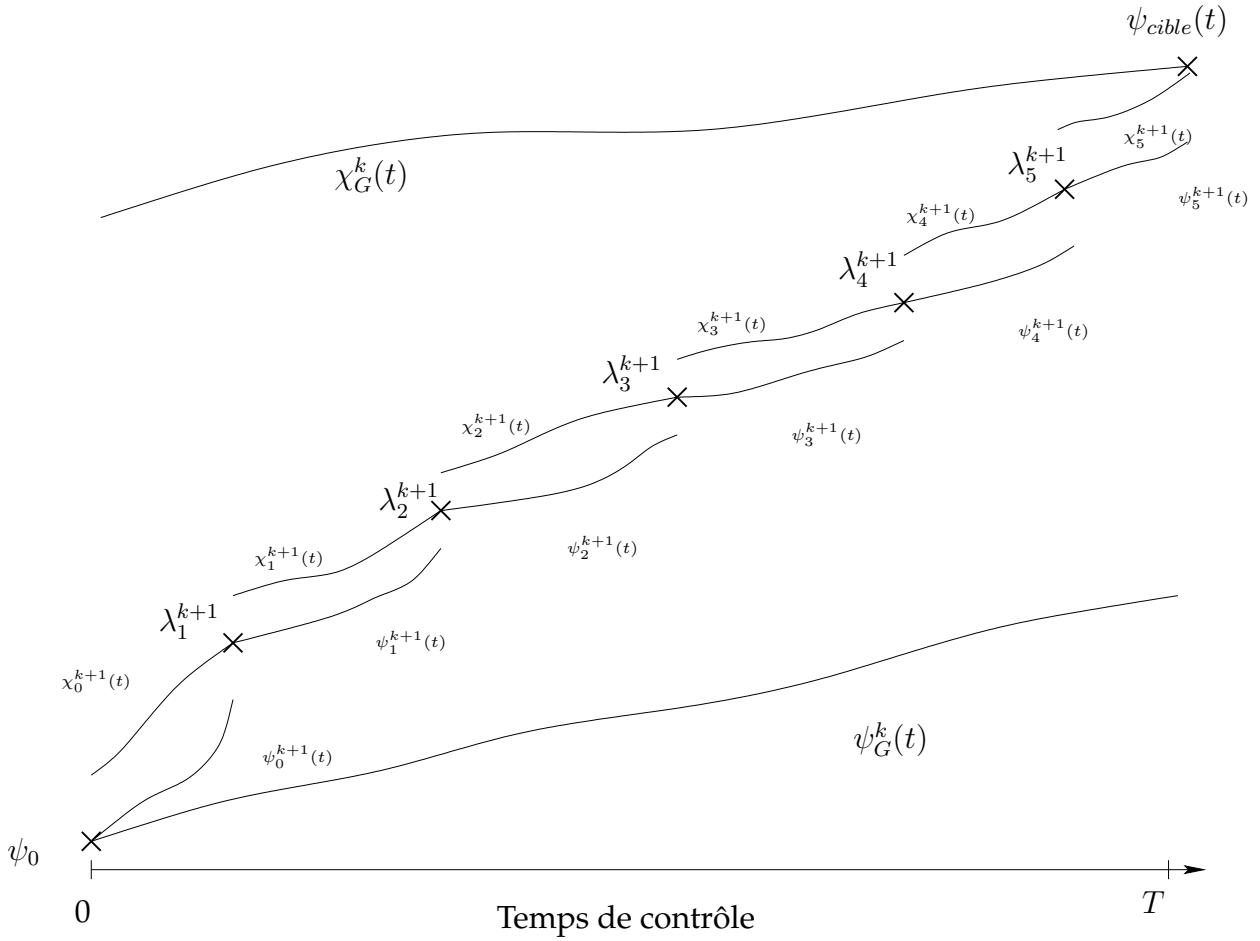


FIG. 4.1 – Une itération du schéma parallèle. Le tracking est effectué sur les sous-intervalles $[T_n, T_{n+1}]$. Les points λ_n^k sont redéfinis à chaque itération.

4.4.2 Pénalisation du champ

De même qu'à la section 4.2, notons ψ_n , χ_n et ε_n les restrictions des fonctions ψ , χ et ε à l'intervalle $[T_n, T_{n+1}]$. Les points initiaux et les cibles définis à la section 4.4.1 conduisent à considérer N problèmes d'optimisation sur les sous-intervalles $[T_n, T_{n+1}]$. Les fonctionnelles de coût associées à ces problèmes sont de la forme :

$$J_n(\varepsilon_n) = 2\Re\langle \psi_n(T_{n+1}) | \lambda_{n+1} \rangle - \int_{T_n}^{T_{n+1}} \alpha'_n(t) \varepsilon^2(t) dt,$$

où α'_n est une fonction de pénalisation positive sur $[T_n, T_{n+1}]$. Il s'agit alors de maximiser ces fonctionnelles sous la contrainte :

$$\begin{cases} i\partial_t \psi_n(x, t) = (H - \mu(x)\varepsilon_n(t))\psi_n(x, t) \\ \psi_n(x, T_n) = \lambda_n, \end{cases}$$

où H représente l'Hamiltonien interne. En introduisant le multiplicateur de Lagrange χ_n défini par :

$$\begin{cases} i\partial_t \chi_n(x, t) = (H - \mu(x)\varepsilon_n(t))\chi_n(x, t) \\ \chi_n(x, T_{n+1}) = \lambda_{n+1}, \end{cases}$$

l'équation d'Euler-Lagrange concernant le champ ε_n est :

$$\alpha'_n(t)\varepsilon_n(t) = -\mathfrak{S}\langle \chi_n(t) | \mu | \psi_n(t) \rangle. \quad (4.22)$$

La quantité $\langle \chi_n(t) | \mu | \psi_n(t) \rangle$ peut être évaluée en fonction des variables $\psi_G(t)$ et $\chi_G(t)$. En supposant que les propagateurs soient les mêmes pour ψ et ψ_G d'une part et pour χ et χ_G d'autre part et en supposant de plus que les sous-intervalles soient égaux, nous avons en effet, d'après (4.21) :

$$\begin{aligned} \langle \chi_n(t) | \mu | \psi_n(t) \rangle &= \frac{\langle (N - n - 1)\psi_G(t) + (n + 1)\chi_G(t) | \mu | (N - n)\psi_G(t) + n\chi_G(t) \rangle}{\| (N - n - 1)\psi_G(t) + (n + 1)\chi_G(t) \| \cdot \| (N - n)\psi_G(t) + n\chi_G(t) \|} \\ \mathfrak{S}\langle \chi_n(t) | \mu | \psi_n(t) \rangle &= \frac{N\mathfrak{S}\langle \chi_G(t) | \mu | \psi_G(t) \rangle}{\| (N - n - 1)\psi_G(t) + (n + 1)\chi_G(t) \| \cdot \| (N - n)\psi_G(t) + n\chi_G(t) \|} \\ &= \frac{\mathfrak{S}\langle \chi_G(t) | \mu | \psi_G(t) \rangle}{N\sqrt{(1 - \delta_n(1 - \delta_n))\|\psi_G(t) - \chi_G(t)\|^2(1 - \delta_{n+1}(1 - \delta_{n+1}))\|\psi_G(t) - \chi_G(t)\|^2}}. \end{aligned} \quad (4.23)$$

Dans le cas où ψ_G, χ_G et ε sont des points critiques de J définie par (4.18), nous avons :

$$\alpha(t)\varepsilon(t) = -\mathfrak{S}\langle \chi_G(t) | \mu | \psi_G(t) \rangle, \quad (4.24)$$

si bien qu'en combinant (4.22), (4.23) et (4.24), nous obtenons le résultat heuristique suivant :

Supposons que les propagateurs soient les mêmes pour ψ et pour ψ_G et pour χ et χ_G . Supposons également que le schéma en temps pararéel soit efficace dans le sens où

$\|\chi_G(t) - \psi_G(t)\|$ est petit devant 1. Alors une condition nécessaire pour qu'un champ ε soit simultanément point critique de J et des fonctionnelles J_n est :

$$\alpha' = \frac{\alpha}{N}. \quad (4.25)$$

Remarques : l'erreur commise sur les points critiques par le schéma en temps pararéel est donc composée de deux termes. Le premier relève de l'approximation par les propagateurs grossiers et le second dépend donc de la qualité du tracking, puisqu'il est déterminé par $\|\psi_G(t) - \chi_G(t)\|$, d'après (4.23). Notons également que le calcul du champ en temps pararéel avec $\alpha' = \frac{\alpha}{N}$ conduit à une sous-estimation de ce dernier puisque (4.23) conduit à :

$$\left| \frac{1}{\alpha'} \Im \langle \chi_n(t) | \mu | \psi_n(t) \rangle \right| \leq \left| \frac{1}{\alpha} \Im \langle \chi_G(t) | \mu | \psi_G(t) \rangle \right|.$$

La stabilité n'est donc pas affectée a priori par ce choix de coefficient α' .

4.4.3 Réduction du temps de calcul

De manière à rester dans le paradigme pararéel il est nécessaire de définir les deux propagateurs F et G présentés à la section 4.2.1 et de préciser l'utilisation qui en est faite.

Propagateurs grossier et fin

Nous avons vu au chapitre 1 que l'avantage principal des propagateurs reposant sur des méthodes de splitting d'opérateur du type de :

$$\psi_{j+1}(x) = e^{-iH_0 \frac{\Delta T}{2}} e^{-i(V(x) - \mu(x)\varepsilon_j)\Delta T} e^{-iH_0 \frac{\Delta T}{2}} \psi_j(x), \quad (4.26)$$

et

$$\chi_j(x) = e^{iH_0 \frac{\Delta T}{2}} e^{i(V(x) - \mu(x)\tilde{\varepsilon}_j)\Delta T} e^{iH_0 \frac{\Delta T}{2}} \chi_{j+1}(x), \quad (4.27)$$

est de conserver la norme des vecteurs au cours de la propagation. Souhaitant conserver cette propriété, nous continuons de travailler avec ces méthodes.

Un choix convenable de propagateur fin est par exemple effectué en assignant à ΔT une petite valeur dans (4.26) et (4.27). Cette valeur peut par exemple être déterminée "empiriquement" en se fixant comme critère que la propagation un pas de temps $\frac{\Delta T}{2}$ ne

modifie pas sensiblement le résultat.

Le propagateur grossier doit quant à lui être choisi plus en fonction de son faible coût de calcul que de sa qualité d'approximation. Plusieurs dégradations du propagateur fin peuvent alors être effectuées. Une première possibilité est de choisir un pas de temps plus grand. Il est également possible d'envisager d'utiliser des méthodes de Galerkin et la méthode du Toolkit [13] pour diminuer le nombre de calculs.

Rôle des propagateurs dans l'algorithme et optimisation

La contrainte imposée a priori sur le propagateur fin est qu'il ne doit pas calculer de propagation sur $[0, T]$ tout entier. Le propagateur grossier permet quant à lui d'ajuster les valeurs de la suite Λ au cours des itérations. Une spécificité importante du couplage avec les schémas monotones provient du fait que les calculs liés à ces schémas ne consistent pas seulement en des propagations. Ils réalisent également une optimisation, c'est-à-dire un calcul des champs ε et $\tilde{\varepsilon}$ à chaque itération. Ce calcul est plus ou moins coûteux selon le schéma monotone considéré. Nous fixons également comme contrainte de ne mettre à jour les champs qu'en parallèle, sur les sous-intervalles. Aucune optimisation ne doit être réalisée pendant les propagations grossières.

4.4.4 Algorithme

De même qu'à la section 4.2.4, notons $\varepsilon_n, \tilde{\varepsilon}_n, \psi_n$ et χ_n les restrictions de $\varepsilon, \tilde{\varepsilon}, \psi$ et χ à l'intervalle $[T_n, T_{n+1}]$. L'algorithme proposé est alors le suivant. Etant donné deux champs ε^0 et $\tilde{\varepsilon}^0$, un état initial ψ_0 et un état cible ψ_{cible} , calculer récursivement les champs ε^k et $\tilde{\varepsilon}^k$ selon les étapes suivantes :

1. Propagation grossière directe de ψ_0 par le champ ε^k et grossière rétrograde de ψ_{cible} par $\tilde{\varepsilon}^k$ sur $[0, T]$ pour obtenir ψ_G^k et χ_G^k .
2. Calcul de $\Lambda^k = (\lambda_n^k)_{n=1\dots N-1}$ par (4.21).
3. Réalisation en parallèle des étapes suivantes :
 - (a) Propagation fine rétrograde de λ_{n+1}^k sur $[T_n, T_{n+1}]$ par $\tilde{\varepsilon}_n^k$ pour obtenir χ_n^k .
 - (b) Propagation fine directe de λ_n^k sur $[T_n, T_{n+1}]$ et optimisation simultanée par algorithme monotone de ε_n^k pour obtenir ε_n^{k+1} .

- (c) Propagation fine rétrograde de λ_{n+1}^k sur $[T_n, T_{n+1}]$ et optimisation simultanée par algorithme monotone de $\tilde{\varepsilon}_n^k$ pour obtenir $\tilde{\varepsilon}_n^{k+1}$.
4. Concaténation des termes des suites $(\varepsilon_n^{k+1})_{n=0\dots N-1}$ et $(\tilde{\varepsilon}_n^{k+1})_{n=0\dots N-1}$ pour obtenir ε^{k+1} et $\tilde{\varepsilon}^{k+1}$.

Parmi les étapes réalisées en parallèle, les étapes 3b et 3c sont les plus coûteuses, puisqu'elles comportent un calcul d'optimisation des champs. Il est possible de supprimer l'une de ces deux étapes en assignant simplement $\tilde{\varepsilon}_n^{k+1} = \varepsilon_n^{k+1}$. Cette démarche correspond aux schémas monotones à deux paramètres avec comme valeur des paramètres²⁰ $(\delta, \eta) = (1, 0)$.

4.4.5 Coût de calcul

Nous pouvons alors comparer a priori les coûts de calcul respectifs des schémas séquentiels et parallélisés. Le coût d'une itération du schéma parallèle peut se décomposer en deux. Une partie du temps de calcul provient des deux propagations grossières sur $[0, T]$. L'autre partie provient des calculs parallèles. Sur un sous-intervalle, trois propagations dont deux avec optimisation sont réalisées. Le coût d'une itération du schéma séquentiel est quant à lui de deux²¹ propagations avec optimisation sur l'intervalle $[0, T]$. Une itération séquentielle est donc approximativement N fois plus coûteuse qu'une itération du schéma parallèle. L'approximation provient des deux propagations grossières sur l'intervalle $[0, T]$ et des propagations fines parallèles sur les sous-intervalles $[T_n, T_{n+1}]$.

4.4.6 Résultats numériques

L'algorithme de la section 4.4.4 a été testé sur l'exemple du problème de contrôle de l'orientation exposé au chapitre 3. Les paramètres liés au modèle étant conservés, la fonctionnelle choisie est alors :

$$J(\varepsilon) = 2\Re\langle\psi_{cible}|\psi(T)\rangle - \int_0^T \alpha(t)\varepsilon^2(t)dt, \quad (4.28)$$

²⁰Ce qui correspond au schéma de Krotov [27].

²¹Notons que la première propagation ne comporte pas d'optimisation du champ.

où ψ_{cible} est une configuration convenable du point de vue de l'orientation²². Fixons à $N = 10$ le nombre de sous-intervalles définis de manière régulière selon la formule (4.20). Nous fixons alors le paramètre α' par rapport au paramètre α selon l'équation 4.25.

Les figures 4.2-4.4 représentent l'évolution du champ de contrôle au cours des itérations parallèles. La figure 4.5 représente le champ calculé par algorithme monotone séquentiel pour la fonctionnelle (4.28).

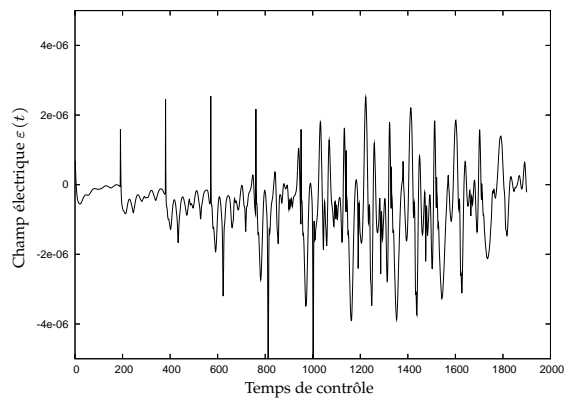


FIG. 4.2 – Champ de contrôle après une itération.

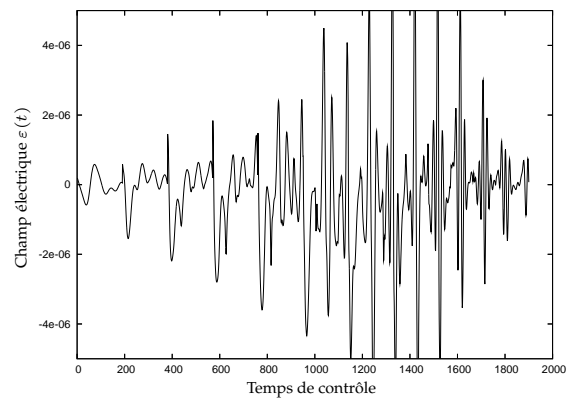


FIG. 4.3 – Champ de contrôle après 10 itérations.

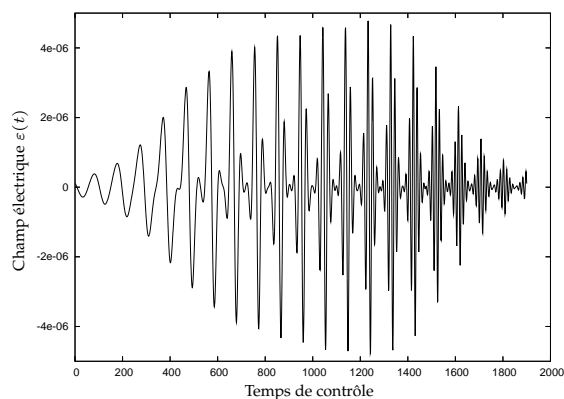


FIG. 4.4 – Champ de contrôle calculé en parallèle après 250 itérations.

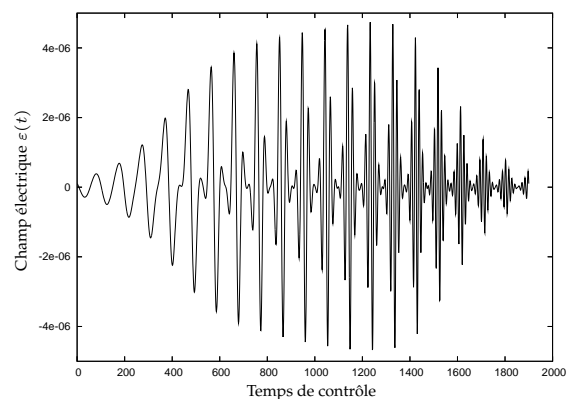


FIG. 4.5 – Champ de contrôle calculé séquentiellement après 250 itérations.

²²Nous prenons dans nos tests le vecteur propre associé à la plus grande valeur propre de l'opérateur $\langle \cos \rangle$.

Nous constatons que les discontinuités disparaissent au cours des itérations. Les propagations fines et grossières sont calculées par splitting d'opérateur avec un rapport de pas de temps de 10.

4.4.7 Convergence du schéma

Le champ obtenu à la convergence est indépendant du nombre N de sous-intervalles. Pour évaluer la qualité des champs obtenus au cours des itérations, une propagation séquentielle est calculée avec chacun des champs obtenus. Les figures 4.6 et 4.7 représentent les valeurs de la fonctionnelle obtenues pour différentes valeurs du paramètre N .

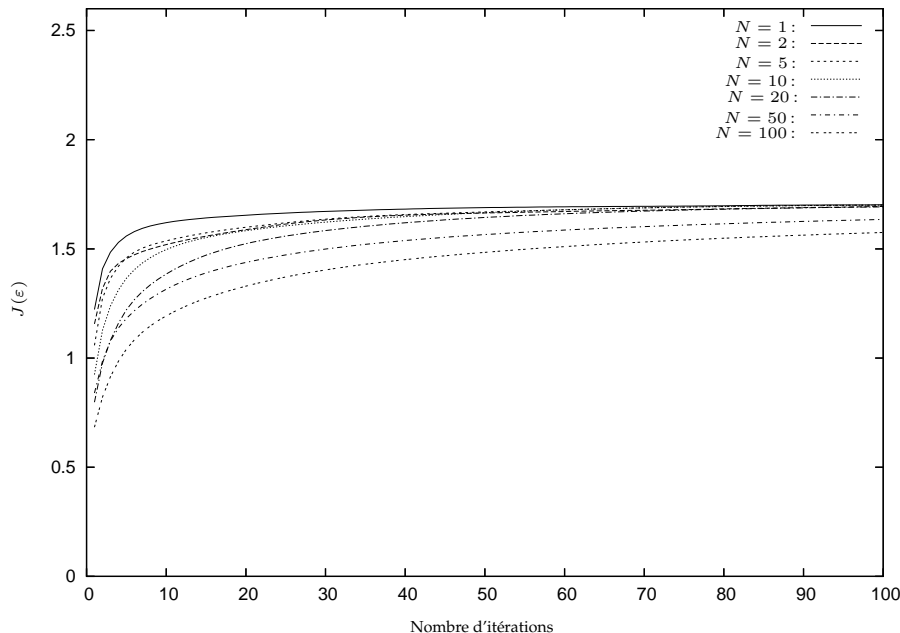


FIG. 4.6 – Evolution des valeurs de la fonctionnelle sur les 100 premières itérations.

Nous constatons que la convergence est plus lente lorsque le nombre de sous-intervalles augmente. Il convient donc de trouver un compromis entre le gain de temps, d'autant plus important que le nombre N est grand, et une convergence convenable.

Evaluons enfin le gain de temps effectif apporté par le nouveau schéma. Pour $N = 10$, nous trouvons un gain de temps d'approximativement 7. La figure 4.8 rend compte du coût de calcul au cours des différentes itérations. Le schéma monotone en temps

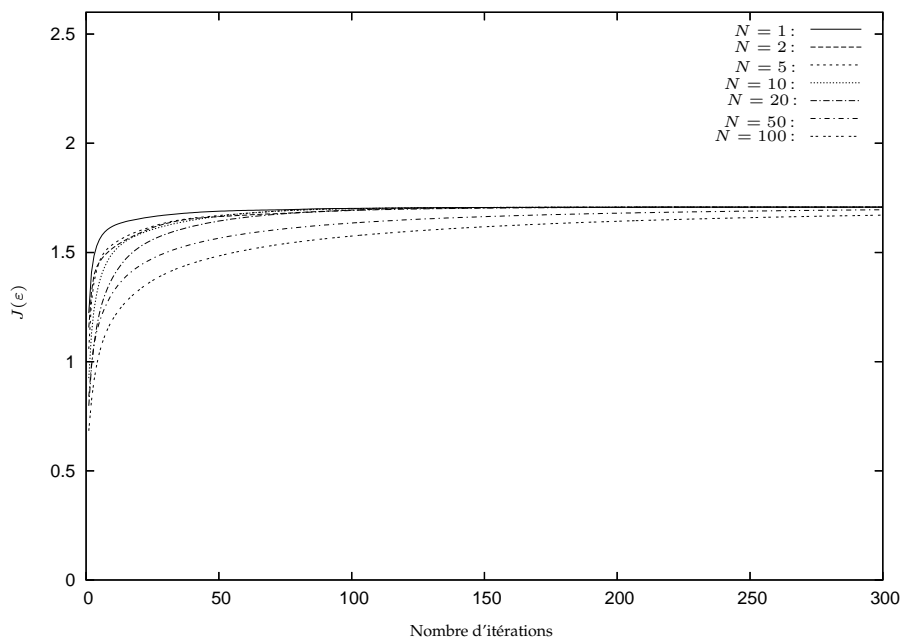


FIG. 4.7 – Evolution des valeurs de la fonctionnelle sur les 300 premières itérations.

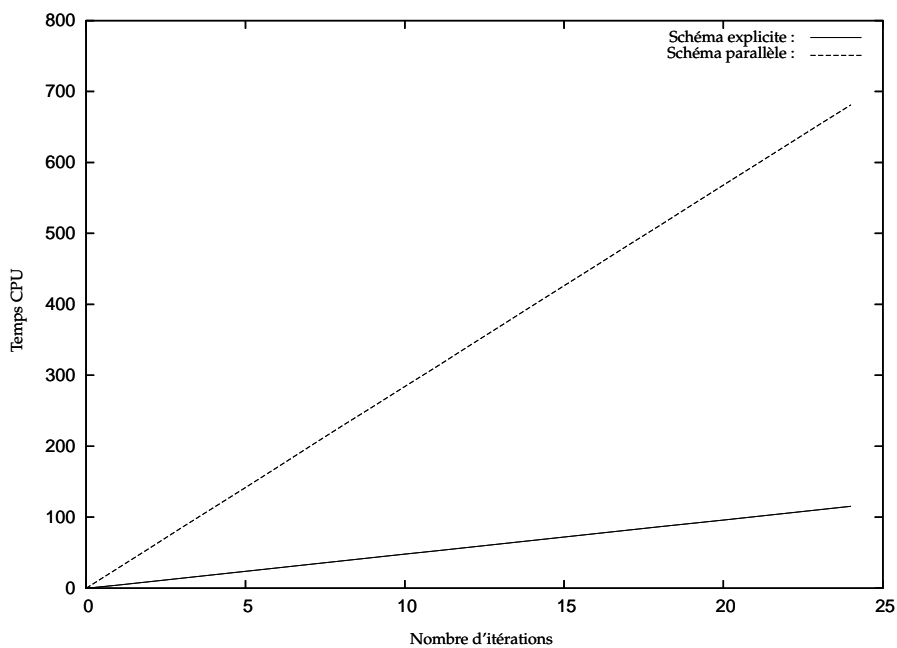


FIG. 4.8 – Temps CPU au cours des 25 premières itérations.

pararéal donne après 500 itérations un champ $\epsilon_{\parallel}^{500}$ conduisant à une valeur de la fonc-

tionnelle de coût $J(\varepsilon^{500}) = 1,6938$. Le temps CPU nécessaire est de 230s. Cette valeur est obtenue après 66 itérations en 1790s avec le schéma monotone sans parallélisation. Le rapport de temps est donc de 7,8. Nous voyons que même avec un grand nombre de sous-intervalles le schéma monotone en temps pararéel reste efficace. Pour effectuer ces tests, nous n'avons pas cherché à optimiser la rapidité des propagateurs. Il pourrait notamment être intéressant de dégrader davantage le propagateur grossier.

Chapitre 5

Sur la convergence des schémas monotones

Résumé

Nous démontrons maintenant un certain nombre de propriétés liées à la convergence des suites produites par schémas monotones. Après avoir mis en évidence certaines propriétés des sous-suites convergentes de ces suites, nous en étudions l'ensemble des points d'accumulation. Nous démontrons en particulier la compacité et la connexité de cet ensemble. Nous présentons enfin des conditions suffisantes de convergence des schémas monotones.

Une partie des résultats de ce chapitre est exposée dans [33].

Sommaire

5.1 Introduction	126
5.1.1 Fonctionnelles	126
5.1.2 Schémas monotones étudiés	127
5.2 Propriétés des suites calculées par schémas monotones	129
5.2.1 Borne pour les champs	129
5.2.2 Convergence faible de sous-suites	131
5.2.3 Convergence forte de sous-suites	132
5.3 Propriétés de l'ensemble des points d'accumulation	139
5.3.1 Premières propriétés	139

5.3.2	Compacité	139
5.3.3	Connexité	140
5.4	Estimations des variations des états et adjoints	142
5.4.1	Variations de l'état	142
5.4.2	Variations de l'adjoint	143
5.5	Conditions suffisantes de convergence	144
5.6	Quelques remarques	146

5.1 Introduction

Ce chapitre traite de la convergence des schémas monotones. L'étude qui suit ne concerne plus précisément que les schémas continus. Les notations utilisées sont celles des chapitres précédents : le symbole Ω désigne un espace vectoriel réel de dimension finie, $\|\cdot\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)}$ et $\langle \cdot, \cdot \rangle$ représentent la norme et le produit hermitien de l'espace hilbertien complexe $\mathbb{L}^2(\Omega, \mathbb{C})$, $\|\cdot\|_2$ et $\langle \cdot, \cdot \rangle$ représentent la norme et le produit scalaire réel de l'espace hilbertien $\mathbb{L}^2([0, T]; \mathbb{R})$. Enfin $\|\cdot\|_1$ et $\|\cdot\|_\infty$ désignent les normes associées respectivement aux espaces $\mathbb{L}^1([0, T]; \mathbb{R})$ et $\mathbb{L}^\infty([0, T]; \mathbb{R})$.

5.1.1 Fonctionnelles

Les résultats de ce chapitre s'appliquent aux deux fonctionnelles à maximiser rencontrées dans cette thèse :

$$J_1(\varepsilon) = \langle \psi(T) | O | \psi(T) \rangle - \int_0^T \alpha(t) \varepsilon^2(t) dt, \quad (5.1)$$

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

Rappelons que les équations d'Euler-Lagrange associées sont alors, dans le cas de J_1 :

$$\begin{cases} i \frac{\partial}{\partial t} \psi(x, t) = (H - \varepsilon(t)\mu(x))\psi(x, t) \\ \psi(x, t = 0) = \psi_0(x) \end{cases} \quad (5.2)$$

$$\begin{cases} i \frac{\partial}{\partial t} \chi(x, t) = (H - \varepsilon(t)\mu(x))\chi(x, t) \\ \chi(x, t = T) = O\psi(x, T) \end{cases} \quad (5.3)$$

$$\alpha(t)\varepsilon(t) = -\Im\langle \chi(t) | \mu | \psi(t) \rangle, \quad (5.4)$$

et dans le cas de J_2 :

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

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

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

où $\psi(x, t)$, H , $\mu(x)$ et $\varepsilon(t)$ ont été définies au chapitre 1.

5.1.2 Schémas monotones étudiés

Les résultats de ce chapitre concernent les schémas monotones à deux paramètres développés par Y. Maday et G. Turinici dans [29]. Si, comme nous l'avons vu au chapitre 1, d'autres schémas monotones existent, nous choisissons de restreindre notre étude à ceux-ci car ils sont représentatifs de la plupart des travaux de cette thèse. Comme nous l'avons stipulé alors, les schémas discrétisés présentés au chapitre 2 et utilisés au chapitre 3 peuvent être considérés comme dérivant de cette classe d'algorithmes.

Rappelons qu'étant donné ε^0 une fonction de $\mathbb{L}^2([0, T], \mathbb{R})$, ces derniers consistent en une résolution itérative des équations suivantes dans le cas de J_1 :

$$\begin{cases} i \frac{\partial}{\partial t} \chi^k(x, t) = (H - \tilde{\varepsilon}^k(t) \mu(x)) \chi^k(x, t) \\ \chi^k(x, t = T) = O \psi^k(x, T) \end{cases}, \quad (5.5)$$

$$\tilde{\varepsilon}^k(t) = (1 - \eta) \varepsilon^k(t) - \frac{\eta}{\alpha} \mathbf{Im} \langle \chi^k(t) | \mu | \psi^k(t) \rangle, \quad (5.6)$$

$$\begin{cases} i \frac{\partial}{\partial t} \psi^{k+1}(x, t) = (H - \varepsilon^k(t) \mu(x)) \psi^{k+1}(x, t) \\ \psi^{k+1}(x, t = 0) = \psi_0(x) \end{cases}, \quad (5.7)$$

$$\varepsilon^{k+1}(t) = (1 - \delta) \tilde{\varepsilon}^k(t) - \frac{\delta}{\alpha} \mathbf{Im} \langle \chi^k(t) | \mu | \psi^{k+1}(t) \rangle, \quad (5.8)$$

où δ et η sont deux réels de l'intervalle $[0, 2]$. Dans le cas de J_2 seule la condition finale de (5.5) diffère et devient :

$$\begin{cases} i \frac{\partial}{\partial t} \chi^k(x, t) = (H - \tilde{\varepsilon}^k(t) \mu(x)) \chi^k(x, t) \\ \chi^k(x, t = T) = \psi_{cible}(x) \end{cases}. \quad (5.9)$$

Rappelons également que ces schémas font croître les valeurs des fonctionnelle de coût J_1 et J_2 à chaque itération en k puisque :

$$\begin{aligned} J_1(\varepsilon^{k+1}) - J_1(\varepsilon^k) &= \langle \psi^{k+1}(T) - \psi^k(T) | O | \psi^{k+1}(T) - \psi^k(T) \rangle \\ &+ \int_0^T \alpha(t) \left(\frac{2}{\delta} - 1 \right) (\varepsilon^{k+1}(t) - \tilde{\varepsilon}^k(t))^2 dt \\ &+ \int_0^T \alpha(t) \left(\frac{2}{\eta} - 1 \right) (\tilde{\varepsilon}^k(t) - \varepsilon^k(t))^2 dt, \\ J_2(\varepsilon^{k+1}) - J_2(\varepsilon^k) &= \int_0^T \alpha(t) \left(\frac{2}{\delta} - 1 \right) (\varepsilon^{k+1}(t) - \tilde{\varepsilon}^k(t))^2 dt \\ &+ \int_0^T \alpha(t) \left(\frac{2}{\eta} - 1 \right) (\tilde{\varepsilon}^k(t) - \varepsilon^k(t))^2 dt. \end{aligned}$$

Ces formules sont valables dans les cas où δ et η ne sont pas nuls. Dans le cas où l'un de ces deux paramètres est nul, une formule analogue montre que la différence reste positive.

Tous les résultats de ce chapitre sont présentés sur la fonctionnelle J_1 . Ce choix est essentiellement motivé par des raisons de clarté de l'exposé. Les preuves des théorèmes peuvent être très facilement adaptées à la fonctionnelle J_2 pour laquelle elles sont d'ailleurs souvent plus simples. Nous signalons au besoin ces adaptations au cours du chapitre. A partir de maintenant, nous notons simplement J la fonctionnelle J_1 .

Enfin, nous considérons dans ce chapitre les schémas obtenus pour des couples $(\delta, \eta) \neq (2, 2)$ et dont la condition initiale ε^0 est bornée dans l'espace $\mathbb{L}^\infty([0, T], \mathbb{R})$.

5.2 Propriétés des suites calculées par schémas monotones

Nous prouvons tout d'abord que les suites $(\varepsilon^k)_{k \in \mathbb{N}}$ et $(\tilde{\varepsilon}^k)_{k \in \mathbb{N}}$ obtenues par (5.5-5.8) sont, sous certaines hypothèses, nécessairement bornées dans $\mathbb{L}^\infty([0, T], \mathbb{R})$, donc dans $\mathbb{L}^2([0, T], \mathbb{R})$. Nous prouvons ensuite que toute sous-suite faiblement convergente de ces suites est en fait fortement convergente.

5.2.1 Borne pour les champs

De même qu'aux chapitres précédents, supposons que les opérateurs O et μ sont bornés sur $\mathbb{L}^2(\Omega, \mathbb{C})$ et notons $\|O\|_*$ et $\|\mu\|_*$ leurs normes. Notons également α_- le réel, supposé strictement positif défini par :

$$\alpha_- = \inf_{t \in [0, T]} (\alpha(t)).$$

La preuve présentée est très similaire à celle du cas discret exposée au chapitre 2.

Théorème 7. *Soit $(\tilde{\varepsilon}^k)_{k \in \mathbb{N}}$ et $(\varepsilon^k)_{k \in \mathbb{N}}$ les suites définies par récurrence à partir des équations (5.6) et (5.8). Supposons que ε^0 soit bornée sur $[0, T]$. Alors il existe un réel positif M , ne dépendant que de α_- , $\|\varepsilon^0\|_\infty$, δ , η , $\|\mu\|_*$ et $\|O\|_*$, tel que :*

$$\forall t \in [0, T], \forall k \in \mathbb{N}, \quad |\tilde{\varepsilon}^k(t)| \leq M, \quad |\varepsilon^k(t)| \leq M.$$

Preuve : Définissons M par :

$$M = \max(\|\varepsilon^0\|_\infty, \max(1, \frac{\delta}{2-\delta}, \frac{\eta}{2-\eta}) \frac{\|O\|_* \|\mu\|_*}{\alpha_-}) \quad (5.10)$$

et montrons par récurrence le résultat. Supposons la majoration suivante vraie au rang k :

$$\forall t \in [0, T], |\varepsilon^k(t)| \leq M.$$

La définition (5.8) entraîne :

$$|\tilde{\varepsilon}^k(t)| \leq |1 - \eta|M + \left| \frac{\eta \Delta T}{\alpha(t)} \mathfrak{S} \langle \chi^k(t) | \mu | \psi^k(t) \rangle \right|.$$

D'après l'inégalité de Cauchy-Schwartz :

$$|\langle \chi^k(t) | \mu | \psi^k(t) \rangle| \leq \|\chi^k(t)\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} \|\mu\|_* \|\psi^k(t)\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)}.$$

Puisque les normes des différentes fonctions sont conservées au cours de la propagation, nous avons de plus :

$$\|\psi^k(t)\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} = \|\psi_0\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} = 1,$$

$$\|\chi^k(t)\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} = \|\chi^k(T)\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} = \|O\psi^k(T)\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} \leq \|O\|_*,$$

ce qui donne finalement :

$$|\tilde{\varepsilon}^k(t)| \leq |1 - \eta|M + \eta \frac{\|O\|_* \|\mu\|_*}{\alpha_-}.$$

Si $\eta \leq 1$ alors $|1 - \eta| = 1 - \eta$ et puisque $\frac{\|O\|_* \|\mu\|_*}{\alpha_-} \leq M$:

$$|\tilde{\varepsilon}^k(t)| \leq (1 - \eta)M + \eta M = M.$$

Si $\eta \geq 1$ alors $|1 - \eta| = \eta - 1$ et puisque $\frac{\eta}{2-\eta} \frac{\|O\|_* \|\mu\|_*}{\alpha_-} \leq M$:

$$|\tilde{\varepsilon}^k(t)| \leq (\eta - 1)M + (2 - \eta)M = M.$$

Partant de cette majoration des valeurs de $\tilde{\varepsilon}^k$, un raisonnement analogue permet de déduire :

$$\forall t \in [0, T], |\varepsilon^{k+1}(t)| \leq M,$$

ce qui achève la démonstration par récurrence. ■

Nous conservons la notation M dans la suite du texte.

Dans le cas de la fonctionnelle J_2 et des schémas monotones correspondants, une preuve analogue permet d'obtenir une borne M définie par :

$$M = \max(\|\varepsilon^0\|_\infty, \max(1, \frac{\delta}{2-\delta}, \frac{\eta}{2-\eta}) \frac{\|\mu\|_*}{\alpha_-}).$$

5.2.2 Convergence faible de sous-suites

Extraction de sous-suites

Puisque les suites $(\varepsilon^k)_{k \in \mathbb{N}}$, $(\tilde{\varepsilon}^k)_{k \in \mathbb{N}}$ sont bornées sur $[0, T]$, elles appartiennent à l'espace de Hilbert $\mathbb{L}^2([0, T], \mathbb{R})$. Il est donc possible d'extraire de ces suites des sous-suites faiblement convergentes $(\varepsilon^{k_n})_{n \in \mathbb{N}}$ et $(\tilde{\varepsilon}^{k_n})_{n \in \mathbb{N}}$ de limites faibles respectives ε et $\tilde{\varepsilon}$.

Ecart entre termes consécutifs

La suite $J(\varepsilon^k)$ est bornée puisque, par exemple :

$$|J(\varepsilon^k)| \leq \|O\|_* + \alpha_+ T M^2,$$

où α_+ est défini par :

$$\alpha_+ = \sup_{t \in [0, T]} (\alpha(t)).$$

Nous avons également :

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

qui donne après sommation :

$$\begin{aligned} J(\varepsilon^n) - J(\varepsilon^0) &= \sum_{k=0}^{n-1} \langle \psi^{k+1}(T) - \psi^k(T) | O | \psi^{k+1}(T) - \psi^k(T) \rangle \\ &+ \int_0^T \alpha(t) \left(\frac{2}{\delta} - 1\right) \sum_{k=0}^{n-1} (\varepsilon^{k+1}(t) - \tilde{\varepsilon}^k(t))^2 dt \\ &+ \int_0^T \alpha(t) \left(\frac{2}{\eta} - 1\right) \sum_{k=0}^{n-1} (\tilde{\varepsilon}^k(t) - \varepsilon^k(t))^2 dt. \end{aligned}$$

Les séries $\sum_{k=0}^n \|\varepsilon^{k+1} - \tilde{\varepsilon}^k\|_2^2$ et $\sum_{k=0}^n \|\tilde{\varepsilon}^k - \varepsilon^k\|_2^2$ convergent donc et par conséquent :

$$\lim_n \|\varepsilon^{k_n+1} - \varepsilon^{k_n}\|_2 = \lim_n \|\tilde{\varepsilon}^{k_n+1} - \tilde{\varepsilon}^{k_n}\|_2 = 0. \quad (5.11)$$

Ces résultats subsistent lorsque $\delta = 0, \eta \neq 0$ et $\delta \neq 0, \eta = 0$.

Nous en déduisons de plus que $\varepsilon = \tilde{\varepsilon}$.

Remarque : De telles propriétés ne suffisent bien entendu pas à prouver la convergence des suites $(\tilde{\varepsilon}^k)_{k \in \mathbb{N}}$ et $(\varepsilon^k)_{k \in \mathbb{N}}$. Considérons ainsi la suite $(u_n)_{n \in \mathbb{N}}$ définie par $u_n = \sin(\log(n+1))$. Il est alors aisé de vérifier que :

- $(u_n)_{n \in \mathbb{N}}$ est bornée,
- $\sum_{n=0}^{+\infty} (u_{n+1} - u_n)^2 < +\infty$ (et donc $u_{n+1} - u_n \rightarrow 0$).

Pour autant, cette suite ne converge pas. Son ensemble d'adhérence est le segment $[-1, 1]$.

Convergence faible de $(\varepsilon^{k_n+p})_{n \in \mathbb{N}}$ et $(\tilde{\varepsilon}^{k_n+p})_{n \in \mathbb{N}}$

Soit $\check{\varepsilon}$ une fonction test de $\mathbb{L}^2([0, T], \mathbb{R})$. Puisque :

$$\langle \check{\varepsilon}, \varepsilon^{k_n+1} \rangle = \langle \check{\varepsilon}, \varepsilon^{k_n+1} - \varepsilon^{k_n} \rangle + \langle \check{\varepsilon}, \varepsilon^{k_n} \rangle,$$

et

$$|\langle \check{\varepsilon}, \varepsilon^{k_n+1} - \varepsilon^{k_n} \rangle| \leq \|\check{\varepsilon}\|_2 \cdot \underbrace{\|\varepsilon^{k_n+1} - \varepsilon^{k_n}\|_2}_{\rightarrow 0},$$

la suite $(\varepsilon^{k_n+1})_{n \in \mathbb{N}}$ converge elle aussi faiblement vers ε .

Par des arguments analogues, $(\varepsilon^{k_n+p})_{n \in \mathbb{N}}$ et $(\tilde{\varepsilon}^{k_n+p})_{n \in \mathbb{N}}$ convergent aussi faiblement vers ε pour tout entier p positif fixé.

5.2.3 Convergence forte de sous-suites

Nous montrons dans cette section que la convergence faible des sous-suites précédentes entraîne la convergence forte des états et adjoints correspondant. Nous en déduisons la convergence forte des sous-suites.

Formulation intégrale

Ecrivons (5.2) et (5.3) sous les formes intégrales suivantes :

$$\begin{aligned}\psi(t) &= e^{-iHt}\psi_0 + \int_0^t \varepsilon(s)e^{-iH(t-s)}i\mu\psi(s)ds, \\ \chi(t) &= e^{iH(T-t)}\chi(T) - \int_t^T \varepsilon(s)e^{iH(s-t)}i\mu\chi(s)ds.\end{aligned}$$

Cette formulation, aussi appelée *formulation de Duhamel*²³ est induite par les équations (5.2) et (5.3) mais ne leur est pas toujours équivalente. Dans notre cas l'équivalence a cependant lieu, d'après les propriétés de l'opérateur :

$$\begin{aligned}\mathbb{H}_0^1(\Omega) &\rightarrow \mathbb{H}^{-1}(\Omega) \\ \psi &\mapsto \mu\psi,\end{aligned}\tag{5.12}$$

et puisque ε est borné.

L'opérateur défini par (5.12) appartient en effet à $\mathcal{C}(\mathbb{H}_0^1(\Omega), \mathbb{H}^{-1}(\Omega))$. Cette condition assure l'équivalence d'après la proposition 3.1.3 de [70].

Convergence forte de l'état et de l'adjoint

Cette section s'inspire dans ses grandes idées de [25]. Nous montrons que la convergence faible des sous-suites $(\varepsilon^{k_n})_{n \in \mathbb{N}}$ et $(\tilde{\varepsilon}^{k_n})_{n \in \mathbb{N}}$ implique la convergence forte en temps et en espace des suites $(\psi^{k_n})_{n \in \mathbb{N}}$ et $(\chi^{k_n})_{n \in \mathbb{N}}$.

Nous utilisons dans la suite la convergence faible des suites $(\varepsilon^{k_n})_{n \in \mathbb{N}}$ et $(\tilde{\varepsilon}^{k_n})_{n \in \mathbb{N}}$ dans $\mathbb{L}^1([0, T], \mathbb{R})$. Celle-ci est une conséquence de la convergence faible dans $\mathbb{L}^2([0, T], \mathbb{R})$ obtenue à la section 5.2.2, puisque $\mathbb{L}^1([0, T], \mathbb{R})' = \mathbb{L}^\infty([0, T], \mathbb{R}) \subset \mathbb{L}^2([0, T], \mathbb{R})$.

Soit ψ l'état associé à la limite faible ε de la suite $(\varepsilon^{k_n})_{n \in \mathbb{N}}$ et $z^n(t) = \psi^{k_n}(t) - \psi(t)$. Les deux identités :

$$\begin{aligned}\psi^{k_n}(t) &= e^{-iHt}\psi_0 + \int_0^t \varepsilon^{k_n}(s)e^{-iH(t-s)}i\mu\psi^{k_n}(s)ds, \\ \psi(t) &= e^{-iHt}\psi_0 + \int_0^t \varepsilon(s)e^{-iH(t-s)}i\mu\psi(s)ds,\end{aligned}$$

²³On se référera à [70] pour plus de détails sur cette formulation.

permettent alors d'écrire :

$$z^n(t) = \int_0^t (\varepsilon^{k_n}(s) - \varepsilon(s)) e^{-iH(t-s)} \frac{\mu}{i} \psi(s) ds + \int_0^t \varepsilon^{k_n}(s) e^{-iH(t-s)} \frac{\mu}{i} z^n(s) ds.$$

Soit $d_n = \sup_{t \in [0, T]} \left\| \int_0^t (\varepsilon^{k_n}(s) - \varepsilon(s)) e^{-iH(t-s)} \frac{\mu}{i} \psi(s) ds \right\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)}$. Nous montrons tout d'abord un résultat intermédiaire sur la suite $(d_n)_{n \in \mathbb{N}}$:

Lemme 4. *En conservant les notations précédentes, la suite $(d_n)_{n \in \mathbb{N}}$ vérifie :*

$$\lim_n d_n = 0$$

.

Preuve : Supposons le lemme faux. Alors il existe un réel $\eta > 0$, une sous-suite $(\varepsilon^{k'_n})_{n \in \mathbb{N}}$ de $(\varepsilon^{k_n})_{n \in \mathbb{N}}$ et une suite de réels $(t_n)_{n \in \mathbb{N}}$ dans $[0, T]$, que l'on peut supposer converger vers une limite t , tels que :

$$\left\| \int_0^{t_n} (\varepsilon^{k'_n}(s) - \varepsilon(s)) e^{-iH(t_n-s)} \frac{\mu}{i} \psi(s) ds \right\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} > \eta.$$

Supposons également, sans perte de généralité que $t_n - t$ est de signe constant. Dans le cas où $t \leq t_n$ pour tout entier k posons :

$$c_n = \sup_{s \in [0, t_n]} \left\| (e^{-iH(t_n-s)} - e^{-iH(t-s)}) \frac{\mu}{i} \psi(s) \right\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)}.$$

Les continuités de $(x, \tau) \mapsto e^{\frac{H}{i}\tau} x$ et ψ impliquent que $(c_n)_{n \in \mathbb{N}}$ est une suite de limite nulle. Nous en déduisons :

$$\begin{aligned} \lim_n \left\| \int_0^{t_n} (\varepsilon^{k'_n}(s) - \varepsilon(s)) (e^{-iH(t_n-s)} - e^{-iH(t-s)}) \frac{\mu}{i} \psi(s) ds \right\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} \\ \leq \lim_n c_n \int_0^{t_n} |\varepsilon^{k'_n}(s) - \varepsilon(s)| ds = 0. \end{aligned} \quad (5.13)$$

De plus, puisque $\varepsilon^{k_n} \rightharpoonup \varepsilon$ dans $\mathbb{L}^1([0, T], \mathbb{R})$, la fonction $|\varepsilon^{k_n} - \varepsilon|$ est uniformément équi-intégrable²⁴ sur $[0, T]$ et par conséquent :

$$\lim_n \left\| \int_t^{t_n} (\varepsilon^{k'_n}(s) - \varepsilon(s)) e^{-iH(t-s)} \frac{\mu}{i} \psi(s) ds \right\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} \leq \lim_n \int_t^{t_n} |\varepsilon^{k'_n}(s) - \varepsilon(s)| ds = 0. \quad (5.14)$$

²⁴Pour une preuve de ce résultat, on se référera à [71] pp.293-294.

En combinant (5.13) et (5.14), il vient :

$$\lim_n \left\| \int_0^{t_n} (\varepsilon^{k'_n}(s) - \varepsilon(s)) e^{-iH(t_n-s)} \frac{\mu}{i} \psi(s) ds - \int_0^t (\varepsilon^{k'_n}(s) - \varepsilon(s)) v(s) ds \right\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} = 0, \quad (5.15)$$

où v est définie par $v(s) = e^{-iH(t-s)} \frac{\mu}{i} \psi(s)$. Un raisonnement analogue permet de montrer le même résultat lorsque $t \geq t_n$ pour tout k .

Soit $\rho = \sup_n \int_0^t |\varepsilon^{k'_n}(s) - \varepsilon(s)| ds$. Puisque $v \in \mathcal{C}([0, T]; \mathbb{L}^2(\Omega, \mathbb{C}))$ il existe une fonction étagée g telle que :

$$\|g - v\|_{L^\infty([0, T]; \mathbb{L}^2(\Omega, \mathbb{C}))} < \eta/4\rho.$$

Ecrivons g sous la forme $g(s) = \sum_{j=1}^l \mathbb{1}_{I_j}(s) e_j$, où l'ensemble $\{I_j\}_{j=1..l}$ forme une partition de l'intervalle $[0, T]$, la fonction $\mathbb{1}_{I_j}$ est l'indicatrice du segment I_j et les vecteurs $\{e_j\}_{j=1..l}$ appartiennent à $\mathbb{L}^2(\Omega, \mathbb{C})$. Alors :

$$\left\| \int_0^t (\varepsilon^{k'_n}(s) - \varepsilon(s)) g(s) ds \right\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} = \left\| \sum_{j=1}^l \int_{I_j \cap [0, T]} \varepsilon^{k'_n}(s) - \varepsilon(s) ds \cdot e_j \right\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)},$$

qui tend vers 0 d'après la convergence faible de la suite $(\varepsilon^{k'_n})_{n \in \mathbb{N}}$. Par conséquent, pour k suffisamment grand :

$$\begin{aligned} \left\| \int_0^t (\varepsilon^{k'_n}(s) - \varepsilon(s)) v(s) ds \right\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} &\leq \frac{\eta}{4\rho} \int_0^t |\varepsilon^{k'_n}(s) - \varepsilon(s)| ds + \left\| \int_0^t (\varepsilon^{k'_n}(s) - \varepsilon(s)) g(s) ds \right\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} \\ &\leq \frac{\eta}{2}. \end{aligned} \quad (5.16)$$

La combinaison de (5.16) et de (5.15) donne une contradiction à l'hypothèse de départ :

$$\left\| \int_0^{t_n} (\varepsilon^{k'_n}(s) - \varepsilon(s)) e^{-iH(t_n-s)} \frac{\mu}{i} \psi(s) ds \right\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} > \eta.$$

Ceci achève la démonstration du lemme intermédiaire. ■

Le résultat précédent :

$$d_n \rightarrow_{n \rightarrow \infty} 0,$$

permet de majorer $z^n(t)$. En effet :

$$\|z^n(t)\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} \leq d_n + \int_0^t |\varepsilon^{k_n}(s)| \cdot \left\| e^{-iH(t-s)} \frac{\mu}{i} z^n(s) \right\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} ds \leq d_n + \|\mu\|_* \int_0^t |\varepsilon^{k_n}(s)| \cdot \|z^n(s)\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} ds.$$

L'inégalité de Gronwall²⁵ donne alors :

$$\forall t \in [0, T], \|z^n(t)\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} \leq d_n \cdot \exp(\|\mu\|_* \int_0^t |\varepsilon^{k_n}(s)| ds) \leq d_n \cdot e^{\|\mu\|_* MT},$$

ce qui prouve la convergence forte dans $\mathbb{L}^\infty([0, T]; \mathbb{L}^2(\Omega, \mathbb{C}))$ de la suite des états $(\psi^{k_n})_{n \in \mathbb{N}}$ vers ψ en espace comme en temps.

Un raisonnement analogue permet de montrer que la suite des adjoints $(\chi^{k_n})_{n \in \mathbb{N}}$ converge également fortement vers χ lorsque $\tilde{\varepsilon}^{k_n}$ converge faiblement. Les calculs sont cependant un peu plus complexes. La différence intervient essentiellement en début de raisonnement. Il faut alors considérer :

$$\chi^{k_n}(t) = e^{iH(T-t)} O\psi^{k_n}(T) - \int_t^T \tilde{\varepsilon}^{k_n}(s) e^{iH(s-t)} \frac{\mu}{i} \chi^{k_n}(s) ds,$$

$$\chi(t) = e^{iH(T-t)} O\psi(T) - \int_t^T \tilde{\varepsilon}(s) e^{iH(s-t)} \frac{\mu}{i} \chi(s) ds,$$

et donc, en posant $\tilde{z}^n(t) = \chi^{k_n}(t) - \chi(t)$:

$$\begin{aligned} \tilde{z}^n(t) &= e^{iH(T-t)} O(\psi^{k_n}(T) - \psi(T)) - \int_t^T (\tilde{\varepsilon}^{k_n}(s) - \tilde{\varepsilon}(s)) e^{iH(s-t)} \frac{\mu}{i} \chi(s) ds \\ &\quad - \int_t^T \tilde{\varepsilon}^{k_n}(s) e^{iH(s-t)} \frac{\mu}{i} (\chi^{k_n}(s) - \chi(s)) ds. \end{aligned}$$

Un lemme semblable au lemme 4 peut alors être prouvé en posant cette fois-ci :

$$\tilde{d}_n = \sup_{t \in [0, T]} \|e^{iH(T-t)} O(\psi^{k_n}(T) - \psi(T)) - \int_t^T (\tilde{\varepsilon}^{k_n}(s) - \tilde{\varepsilon}(s)) e^{iH(s-t)} \frac{\mu}{i} \chi(s) ds\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)}.$$

Et une nouvelle application de l'inégalité de Gronwall permet de conclure.

Notons que dans le cas de J_2 la démonstration de la convergence forte de l'adjoint est identique à celle de l'état puisque la condition $\chi^{k_n}(T) = \psi_{cible}$ est fixe.

²⁵Plusieurs inégalités sont appelées *Inégalité de Gronwall*. Nous utilisons ici :

Lemme 5. Soit A et B deux réels positifs et c un réel quelconque. Alors :

$$\|y(t)\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} \leq A + B \int_c^t \|y(s)\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} ds \Rightarrow \|y(t)\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} \leq A e^{B|t-c|}.$$

Convergence forte du champ

La convergence forte des suites $(\chi^{k_n})_{n \in \mathbb{N}}$, $(\psi^{k_n})_{n \in \mathbb{N}}$ et $(\psi^{k_n+1})_{n \in \mathbb{N}}$ entraîne par bilinéarité la convergence forte des suites $(\frac{\delta}{\alpha} \langle \chi^{k_n} | \mu | \psi^{k_n} \rangle)_{n \in \mathbb{N}}$, $(\frac{\delta}{\alpha} \langle \chi^{k_n} | \mu | \psi^{k_n+1} \rangle)_{n \in \mathbb{N}}$ dans l'espace $\mathbb{L}^\infty([0, T], \mathbb{R})$. Selon les définitions (5.6) et (5.8), nous pouvons écrire $(\varepsilon^{k_n})_{n \in \mathbb{N}}$ sous la forme suivante :

$$\varepsilon^{k_n+1} = \underbrace{(1 - \delta)(1 - \eta)}_{\lambda} \varepsilon^{k_n} + u_n,$$

où :

$$u_n(t) = (1 - \delta)\eta \mathfrak{S} \langle \chi^{k_n}(t) | \mu | \psi^{k_n}(t) \rangle + \delta \mathfrak{S} \langle \chi^{k_n}(t) | \mu | \psi^{k_n+1}(t) \rangle$$

converge fortement d'après les résultats précédents. La valeur absolue $|u_n(t)|$ de ce terme peut être majorée de la manière suivante :

$$|u_n(t)| \leq m = 4 \|\mu\|_* \cdot \|O\|_*.$$

Soit e un réel positif et n' un entier tel que :

$$2m \sum_{l=n'}^{\infty} |\lambda|^l \leq \frac{e}{4}. \quad (5.17)$$

La suite $(u_n)_{n \in \mathbb{N}}$ étant de Cauchy :

$$\exists n_e / \forall s > n_e, \forall p \geq 0, \|u_{s+p} - u_s\|_\infty \leq \frac{e}{n'}. \quad (5.18)$$

Soit p et n deux entiers positifs avec les contraintes suivantes sur n :

$$\|(\lambda^{n+p} - \lambda^n) \varepsilon^0\|_\infty \leq \frac{e}{4}, \quad (5.19)$$

$$m \sum_{j=n+1}^{\infty} |\lambda|^j \leq \frac{e}{4}, \quad (5.20)$$

$$n > n_e + n' - 1. \quad (5.21)$$

Ecrivons ε^{k_n} sous la forme :

$$\varepsilon^{k_n} = \lambda^{n+1} \varepsilon^0 + \sum_{j=0}^n \lambda^j u_{n-j}.$$

Nous avons alors :

$$\begin{aligned} \varepsilon^{k_{n+p}} - \varepsilon^{k_n} &= (\lambda^{n+p} - \lambda^n)\varepsilon^0 + \sum_{j=n+1}^{n+p} \lambda^j u_{n+p-j} \\ &+ \sum_{j=n'}^n \lambda^j (u_{n+p-j} - u_{n-j}) + \sum_{j=0}^{n'-1} \lambda^j (u_{n+p-j} - u_{n-j}). \end{aligned} \quad (5.22)$$

D'après les conditions (5.19) et (5.20) portant sur l'entier n :

$$\begin{aligned} \|(\lambda^{n+p} - \lambda^n)\varepsilon^0\|_\infty &\leq \frac{e}{4}, \\ \left\| \sum_{j=n+1}^{n+p} \lambda^j u_{n+p-j} \right\|_\infty &\leq \sum_{j=n+1}^{\infty} \|\lambda^j u_{n+p-j}\|_\infty \leq m \sum_{j=n+1}^{\infty} |\lambda|^j \leq \frac{e}{4}. \end{aligned}$$

D'après la condition (5.17) portant sur l'entier n' , le troisième terme de (5.22) peut être majoré de la manière suivante :

$$\left\| \sum_{j=n'}^n \lambda^j (u_{n-j+p} - u_{n-j}) \right\|_\infty \leq \sum_{j=n'}^{\infty} \|\lambda^j (u_{n-j+p} - u_{n-j})\|_\infty \leq \frac{e}{4}.$$

Enfin, la propriété de Cauchy (5.18) et la condition (5.21) permettent de majorer le dernier terme de (5.22) :

$$\left\| \sum_{j=0}^{n'-1} \lambda^j (u_{n+p-j} - u_{n-j}) \right\|_\infty = \left\| \sum_{j'=n-n'+1}^n \lambda^{n-j'} (u_{j'+p} - u_{j'}) \right\|_\infty \leq \frac{e}{4}.$$

Nous vérifions ainsi que pour n assez grand et pour p quelconque :

$$\|\varepsilon^{k_{n+p}} - \varepsilon^{k_n}\|_\infty \leq e,$$

si bien que la suite $(\varepsilon^{k_n})_{n \in \mathbb{N}}$ est de Cauchy. Ceci achève donc la preuve de la convergence forte de $(\varepsilon^{k_n})_{n \in \mathbb{N}}$. La limite forte correspondante est nécessairement ε . Un raisonnement analogue permet de prouver que $(\tilde{\varepsilon}^{k_n})_{n \in \mathbb{N}}$ converge fortement vers ε . En passant à la limite dans les équations (5.5-5.8), nous déduisons que ε est un point critique de la fonctionnelle J .

Nous avons alors prouvé le théorème suivant :

Théorème 8. Soit $(\varepsilon^k)_{k \in \mathbb{N}}$ la suite définie par (5.5-5.8), et $(\varepsilon^{k_n})_{n \in \mathbb{N}}$ une sous-suite faiblement convergente dans $\mathbb{L}^2([0, T], \mathbb{R})$. Alors $(\varepsilon^{k_n})_{n \in \mathbb{N}}$ converge fortement dans $\mathbb{L}^\infty([0, T], \mathbb{R})$ vers un point critique de la fonctionnelle J .

Ce théorème peut se prolonger à la suite $(\tilde{\varepsilon}^{k_n})_{n \in \mathbb{N}}$.

5.3 Propriétés de l'ensemble des points d'accumulation

Dans cette section nous nous intéressons à l'ensemble, noté A , des points d'accumulation de la suite $(\varepsilon^k)_{k \in \mathbb{N}}$. A partir de maintenant nous supposons que cet ensemble contient au moins deux points²⁶. Dans le cas où il ne contiendrait qu'un point, la convergence de la suite serait assurée par un raisonnement classique de compacité.

5.3.1 Premières propriétés

Nous pouvons d'ores et déjà énoncer un certain nombre de propriétés simples de l'ensemble A . Le théorème 7 permet de déduire l'inclusion :

$$A \subset B_{\mathbb{L}^\infty([0,T],\mathbb{R})}(0, M),$$

où $B_{\mathbb{L}^\infty([0,T],\mathbb{R})}(0, M)$ représente la boule de $\mathbb{L}^\infty([0, T], \mathbb{R})$ de rayon M défini en (5.10) centrée en 0. De plus, par définition de A et d'après les résultats de la section précédente, A est inclus dans l'ensemble des points critiques de J . Enfin, la propriété de monotonie du schéma implique que A est également inclus dans une ligne de niveau de J .

5.3.2 Compacité

Prouvons une première propriété topologique de l'ensemble A .

Lemme 6. *L'ensemble A est compact.*

Preuve : Soit $(\varepsilon_\infty^n)_{n \in \mathbb{N}}$ une suite de points de A . Par définition de A , nous pouvons associer à cette suite une sous-suite $(\varepsilon^{k_n})_{n \in \mathbb{N}}$ de $(\varepsilon^k)_{k \in \mathbb{N}}$ telle que :

$$\|\varepsilon_\infty^n - \varepsilon^{k_n}\|_\infty \leq \frac{1}{n}. \quad (5.23)$$

En tant que sous-suite de $(\varepsilon^k)_{k \in \mathbb{N}}$, la suite $(\varepsilon^{k_n})_{n \in \mathbb{N}}$ admet des sous-suites convergentes. Soit $(\varepsilon^{k'_n})_{n \in \mathbb{N}}$ une telle sous-suite. D'après le théorème 8, cette sous-suite converge fortement. Sa limite ε^* appartient par définition à A et, d'après (5.23), la suite $(\varepsilon_\infty^n)_{n \in \mathbb{N}}$ converge vers ε^* . Le lemme en découle. ■

²⁶Remarquons que l'ensemble A devrait, en toute rigueur être noté A_{ε_0} puisqu'il dépend du premier terme de la suite $(\varepsilon^k)_{k \in \mathbb{N}}$.

5.3.3 Connexité

Espaces et parties bien enchaînés

Avant d'énoncer une seconde propriété topologique de A , définissons deux notions. Considérons un espace métrique (E, d) .

Définition : Soit P une partie de E , (x, y) un couple de P^2 et e un réel positif. Une e -chaîne dans P entre x et y est une suite finie z_1, \dots, z_N de points de P vérifiant les propriétés suivantes :

- $d(x, z_1) \leq e$
- $d(y, z_N) \leq e$
- $\forall k \in [1, N - 1], d(z^{k+1}, z^k) \leq e.$

L'entier N est appelé *longueur de la e -chaîne*. La notion d'*espace bien enchaîné* peut alors être introduite.

Définition : Une partie P de l'espace E est dite *bien enchaînée* si pour tout couple de points (x, y) de P et pour tout réel e positif, il existe une e -chaîne dans P entre x et y .

Exemple : Une partie connexe d'un espace métrique est bien enchaînée.

Espaces bien enchaînés et compacité

Le lemme suivant donne une condition pour que la réciproque à l'exemple de la section 5.3.3 soit vraie.

Lemme 7. *Un espace bien enchaîné et compact est connexe.*

Preuve : Soit E un ensemble compact bien enchaîné. Supposons qu'il existe deux

sous-ensembles de E notés E_1 et E_2 vérifiant :

$$E_1 \cup E_2 = E,$$

$$E_1 \cap E_2 = \emptyset.$$

Puisqu'il existe des e -chaîne pour tout réel e , nous déduisons que la distance entre E_1 et E_2 est nulle. Puisque E est compact ceci contredit l'hypothèse $E_1 \cap E_2 = \emptyset$. ■

Connexité

A l'aide des résultats précédents, nous pouvons montrer le lemme suivant :

Lemme 8. *L'ensemble A est bien enchaîné.*

Preuve : Soit $(\varepsilon_\infty, \varepsilon'_\infty)$ un couple de A^2 et e un réel positif. Puisque A est une partie compacte, il existe N_0 boules ouvertes de rayon $\frac{e}{4}$ recouvrant A . D'autre part, d'après la définition de A et (5.11), il existe une infinité d'entiers positifs K pour lesquels $l_K = \varepsilon^K, \dots, \varepsilon^{K+N_K}$ est une e -chaîne dans $\mathbb{L}^\infty([0, T], \mathbb{R})$ entre x et y . A partir d'une telle suite $(l_K)_{K \in \mathbb{N}}$ il est possible de construire une autre e -chaîne, de longueur N_0 fixe, notée $l'_K = \varepsilon^{K,1}, \varepsilon^{K,2}, \dots, \varepsilon^{K,N_0}$. En effet, si N_0 est supérieur à N_K , il suffit de définir l'_K par :

$$l'_K = l_K, \underbrace{\varepsilon^{K+N_K}, \dots, \varepsilon^{K+N_K}}_{N_0 - N_K \text{ termes}},$$

et dans le cas inverse, puisque A est recouverte par N_0 boules, il est possible de retirer $N_K - N_0$ termes de l_K tout en gardant une e -chaîne.

Pour chaque entier i compris entre 0 et N_0 , extrayons de $(\varepsilon^{K,i})_{K \in \mathbb{N}}$ une sous-suite fortement convergente. Cette sous-suite est donc également une sous-suite de $(\varepsilon^k)_{k \in \mathbb{N}}$ et sa limite appartient donc à A . ■

L'ensemble A étant compact et bien enchaîné, le lemme 7 nous permet d'énoncer le résultat suivant :

Théorème 9. *L'ensemble A est connexe.*

5.4 Estimations des variations des états et adjoints

Nous supposons toujours que l'ensemble A contient au moins deux points. Afin d'étudier plus précisément les points d'accumulation des suites obtenues par schémas monotones, nous cherchons dans cette section à relier les variations des états et adjoints aux variations de leur variable implicite ε . Puisque les champs étudiés appartiennent à l'ensemble A , les grandeurs considérées vérifient les équations d'Euler-Lagrange (5.2) et (5.3) dont nous faisons usage à plusieurs reprises dans cette section.

5.4.1 Variations de l'état

Considérons deux champs ε et ε' , notons ψ, ψ', χ et χ' les états et adjoints associés par (5.2) et (5.3). Introduisons également les notations $\delta\psi = \psi - \psi', \delta\chi = \chi - \chi'$ et $\delta\varepsilon = \varepsilon - \varepsilon'$. A partir de la formulation intégrale introduite en 5.2.3, nous avons :

$$\begin{aligned} \delta\psi(t) &= \int_0^t e^{-iH(t-s)} \delta\varepsilon(s) i\mu\psi(s) ds \\ &\quad + \int_0^t e^{-iH(t-s)} \varepsilon'(s) i\mu\delta\psi(s) ds. \end{aligned}$$

Puisque l'opérateur e^{-iHt} est unitaire, nous pouvons majorer les deux termes intégraux de l'équation précédente de la manière suivante :

$$\begin{aligned} \left\| \int_0^t e^{-iH(t-s)} \delta\varepsilon(s) i\mu\psi(s) ds \right\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} &\leq \|\mu\|_* \|\delta\varepsilon\|_1, \\ \left\| \int_0^t e^{-iH(t-s)} \varepsilon'(s) i\mu\delta\psi(s) ds \right\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} &\leq M \|\mu\|_* \int_0^t \|\delta\psi(s)\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} ds, \end{aligned}$$

où M est le réel défini en (5.10). D'après l'inégalité de Gronwall (c.f. lemme 5), nous obtenons :

$$\|\delta\psi(t)\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} \leq \|\mu\|_* e^{t\|\mu\|_* M} \|\delta\varepsilon\|_1. \quad (5.24)$$

Remarque : Il est possible d'obtenir une majoration un peu plus fine. Une inégalité du type de celles de Gronwall²⁷ permet en effet de montrer :

$$\|\delta\psi(t)\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} \leq \|\mu\|_* \int_0^t |\delta\varepsilon(s)| e^{(t-s)\|\mu\|_* M} ds,$$

²⁷L'inégalité utilisée ici est celle relevant du théorème suivant :

mais les raffinements effectués dans les majorations ne s'appliquent pas pour l'adjoint.

5.4.2 Variations de l'adjoint

Les calculs sont un peu plus complexes dans le cas de l'adjoint. Nous avons :

$$\delta\chi(t) = [e^{iH(T-t)}\delta\chi(T) - \int_t^T e^{iH(s-t)}i\mu\delta\varepsilon(s)\chi(s)ds] - \int_t^T e^{iH(s-t)}i\mu\varepsilon'(s)\delta\chi(s)ds.$$

En vue d'utiliser une nouvelle fois l'inégalité de Gronwall (c.f. lemme 5), il nous faut majorer les termes du membre de droite de cette égalité. Nous avons :

$$\begin{aligned} \|e^{iH(T-t)}\delta\chi(T)\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} &= \|\delta\chi(T)\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} \leq \|O\|_* \|\delta\psi(T)\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} \\ &\leq \|\mu\|_* \|O\|_* e^{T\|\mu\|_* M} \|\delta\varepsilon\|_1, \\ \left\| - \int_t^T e^{iH(s-t)}i\mu\delta\varepsilon(s)\chi(s)ds \right\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} &\leq \|\mu\|_* \|O\|_* \|\delta\varepsilon\|_1 \\ \left\| \int_t^T e^{iH(s-t)}i\mu\varepsilon'(s)\delta\chi(s)ds \right\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} &\leq \|\mu\|_* M \int_t^T \|\delta\chi(s)\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} ds. \end{aligned}$$

Nous obtenons alors :

$$\|\delta\chi(t)\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} \leq \|O\|_* \|\mu\|_* (1 + e^{T\|\mu\|_* M}) e^{(T-t)\|\mu\|_* M} \|\delta\varepsilon\|_1. \quad (5.25)$$

Ces calculs sont valables dans le cas de la fonctionnelle J_1 , définie par l'équation (5.1). Dans le cas de la fonctionnelle J_2 une estimation analogue peut être obtenue, la différence concerne la majoration de la variation de χ . Des calculs analogues aux précédents donne la majoration suivante :

$$\|\delta\chi(t)\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} \leq \|\mu\|_* e^{(T-t)\|\mu\|_* M} \|\delta\varepsilon\|_1.$$

Lemme 9. Soit f, g et y trois fonctions continues sur un segment $[a, b]$, à valeurs positives et vérifiant l'inégalité :

$$\forall t \in [a, b], y(t) \leq f(t) + \int_a^t y(s)g(s)ds.$$

Alors :

$$\forall t \in [a, b], y(t) \leq f(t) + \int_a^t f(s)g(s)e^{\int_s^t g(u)du} ds.$$

5.5 Conditions suffisantes de convergence

Considérons toujours deux points critiques ε et ε' de la fonctionnelle J . La troisième équation d'Euler-Lagrange (5.4) donne alors :

$$\begin{aligned}\alpha(t)\varepsilon(t) &= -\mathfrak{S}\langle\chi(t)|\mu|\psi(t)\rangle, \\ \alpha(t)\varepsilon'(t) &= -\mathfrak{S}\langle\chi'(t)|\mu|\psi'(t)\rangle.\end{aligned}$$

La différence entre ces deux équations peut alors être écrite de la manière suivante :

$$\alpha(t)\delta\varepsilon(t) = -\mathfrak{S}(\langle\delta\chi(t)|\mu|\psi'(t)\rangle + \langle\chi(t)|\mu|\delta\psi(t)\rangle).$$

Des majorations peuvent alors être effectuée :

$$\begin{aligned}\alpha(t)|\delta\varepsilon(t)| &\leq |\mathfrak{S}\langle\delta\chi(t)|\mu|\psi'(t)\rangle| + |\mathfrak{S}\langle\chi(t)|\mu|\delta\psi(t)\rangle| \\ \alpha_-|\delta\varepsilon(t)| &\leq \|\mu\|_*(\|\delta\chi(t)\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)} + \|\delta\psi(t)\|_{\mathbb{L}^2(\Omega)}).\end{aligned}$$

D'après (5.24) et (5.25), nous avons alors :

$$\alpha_-|\delta\varepsilon(t)| \leq \|\mu\|_*^2(\|O\|_*(1 + e^{T\|\mu\|_*M})e^{(T-t)\|\mu\|_*M} + e^{t\|\mu\|_*M})\|\delta\varepsilon\|_1.$$

Une intégration sur l'intervalle $[0, T]$ donne alors :

$$\alpha_- \|\delta\varepsilon\|_1 \leq \frac{\|\mu\|_*}{M}(\|O\|_*(1 + e^{T\|\mu\|_*M}) + 1)(e^{T\|\mu\|_*M} - 1)\|\delta\varepsilon\|_1. \quad (5.26)$$

Cette dernière inégalité permet d'obtenir un premier résultat de convergence.

Théorème 10. *Le schéma monotone défini par (5.5-5.8) converge fortement sous la condition :*

$$(\|O\|_*(1 + e^{T\|\mu\|_*M}) + 1)(e^{T\|\mu\|_*M} - 1) < \|O\|_*$$

Preuve : Supposons que le schéma ne converge pas. Alors il existe au moins deux points d'accumulation distincts ε et ε' . En gardant les mêmes notations que précédemment, l'inéquation (5.26) est vérifiée. Puisque $\|\delta\varepsilon\|_1 \neq 0$, nous obtenons :

$$\alpha_- \leq \frac{\|\mu\|_*}{M}(\|O\|_*(1 + e^{T\|\mu\|_*M}) + 1)(e^{T\|\mu\|_*M} - 1).$$

D'autre part, la définition de M assure que :

$$\frac{\|O\|_* \|\mu\|_*}{M} \leq \alpha_-.$$

Des deux inéquations précédentes nous déduisons :

$$\|O\|_* \leq (\|O\|_* (1 + e^{T\|\mu\|_* M}) + 1)(e^{T\|\mu\|_* M} - 1),$$

ce qui conduit à une contradiction. ■

Le théorème suivant est l'analogie du théorème 10 dans le cas de la fonctionnelle J_2 :

Théorème 11. *Le schéma monotone défini par (5.9) et (5.6-5.8) converge fortement sous la condition :*

$$T\|\mu\|_* M < \ln\left(\frac{3}{2}\right).$$

Preuve : Par des majorations analogues à celles effectuées dans le cas de la fonctionnelle J_1 , nous obtenons :

$$\alpha_- |\delta\varepsilon(t)| \leq \|\mu\|_*^2 (e^{(T-t)M\|\mu\|_*} + e^{t\|\mu\|_* M}) \|\delta\varepsilon\|_1,$$

qui, par intégration sur l'intervalle $[0, T]$ conduit à :

$$\alpha_- \|\delta\varepsilon\|_1 \leq \frac{\|\mu\|_*}{M} 2(e^{T\|\mu\|_* M} - 1) \|\delta\varepsilon\|_1.$$

Supposons la suite ne converge pas. De même que dans la preuve du théorème 10, nous pouvons alors considérer que $\|\delta\varepsilon\|_1 \neq 0$, ce qui conduit à :

$$\alpha_- \leq \frac{\|\mu\|_*}{M} 2(e^{T\|\mu\|_* M} - 1).$$

Dans le cas de J_2 , la définition de M assure que :

$$\frac{\|\mu\|_*}{M} \leq \alpha_-.$$

Des deux inéquations précédentes, nous déduisons :

$$1 \leq 2(e^{T\|\mu\|_* M} - 1),$$

ce qui fournit une contradiction. ■

Remarque : d'après (5.10), les conditions de convergence sont vérifiées dès que α_- est assez grand et que la norme $\|\varepsilon^0\|_\infty$ suffisamment petite.

5.6 Quelques remarques

Deux résultats n'ont pas été utilisés dans la section précédente. Puisque les champs considérés sont des points d'accumulations, ils relèvent donc des résultats de la section 5.3. En conséquence, la variation $\|\delta\varepsilon\|_1$ précédente peut être choisie arbitrairement petite.

D'autre part, le calcul de la variation effectué au chapitre 1 donne, dans le cas où ε et ε' sont des points critiques :

$$\int_0^T \frac{1}{\alpha(t)} (\mathfrak{S}\langle \chi(t) | \mu | \delta\psi(t) \rangle)^2 - (\mathfrak{S}\langle \delta\chi(t) | \mu | \psi'(t) \rangle)^2 dt + \langle \delta\psi(T) | O | \delta\psi(T) \rangle = 0.$$

Conclusions & perspectives

Un certain nombre d'améliorations des schémas monotones ont donc été présentées dans cette thèse. Nous avons vu comment une discrétisation adéquate permet de stabiliser, d'accélérer et d'affiner les calculs. Cette discrétisation apporte de nouvelles réponses à un certain nombre de problèmes physiques, tels que le contrôle de l'alignement et de l'orientation moléculaire. Une stratégie de parallélisation permet ensuite d'accélérer significativement les calculs en couplant les schémas monotones aux schémas pararéels. Enfin, nous avons montré la compacité et la connexité de l'ensemble des points d'accumulation des schémas monotones continus et dégagé des conditions suffisantes assurant leur convergence. Pour autant, certains résultats peuvent encore être complétés. Le contrôle de l'alignement et de l'orientation pourrait ainsi être plus proche de la réalité en tenant compte des degrés de liberté internes de la molécule, notamment des modes de vibration interne du cyanure. D'autres molécules pourraient également être testées, en particulier celles pour lesquelles le terme quadratique est prépondérant dans l'Hamiltonien (ce qui n'est pas le cas dans le modèle de la molécule de cyanure présenté), de manière à approfondir l'étude de l'interprétation physique des champs de contrôle. L'analyse de l'algorithme de parallélisation des schémas peut être complétée, notamment en cherchant à interpréter le choix des cibles et points initiaux intermédiaires comme une itération de type gradient. Cet algorithme devrait également pouvoir être adapté à des fonctionnelles plus générales, en particulier celles contenant un terme attaché à une observable. Enfin une stratégie de rapprochement des points de départ de la propagation directe -notée $\psi_G(t)$ dans le chapitre 4- et des cibles de la trajectoire rétrograde -notée $\chi_G(t)$ - pourrait être définie de manière à rapprocher plus précisément les points critiques des algorithmes séquentiels et parallèles. L'étude de la convergence des schémas monotones peut quant à elle être complétée sur

plusieurs points. Une étude des Hessiennes des fonctionnelles devrait permettre d'utiliser les résultats obtenus sur la connexité des points d'accumulation pour dégager des conditions suffisantes de convergence plus fines. Un développement au second ordre de la fonctionnelle permettrait, dans une démarche analogue, d'utiliser le fait que la distance entre deux points critiques peut être choisie arbitrairement petite. Une autre démarche consisterait à étudier la convergence des schémas monotones discrets. Il serait en particulier intéressant de montrer l'indépendance de la vitesse de convergence et du pas de discrétisation en temps choisi. Dans une même optique de simplification du problème, il est également possible de considérer seulement le cas de la dimension finie en espace, de sorte que les schémas monotones étudiés s'appliqueraient à des équations différentielles ordinaires. Enfin une dernière approche consisterait à étudier les variations de l'ensemble des points d'accumulation en fonction de la pénalisation définie par le paramètre α . Nous avons en effet montré la convergence des schémas monotones pour les grandes valeurs de ce paramètre.

Enfin, il serait intéressant d'appliquer les schémas monotones à d'autres problèmes de contrôle bilinéaire, de manière à en augmenter la portée et à en approfondir la compréhension.

Bibliographie

- [1] A. Assion, T. Baumert, M. Bergt, T. Brixner, B. Kiefer, V. Seyfried, M. Strehle, G. Gerber. Control of chemical reactions by feedback-optimized phase-shaped femtosecond laser pulses. *Science*, **282** : 919–922, 1998.
- [2] R. J. Levis, G. Menkir, H. Rabitz. Selective bond dissociation and rearrangement with optimally tailored, strong field laser pulses. *Science*, **292** : 709–713, 2001.
- [3] T. Weinacht, J. Ahn, P. Bucksbaum. Controlling the shape of a quantum wavefunction. *Nature*, **397** : 233–235, 1999.
- [4] C. Bardeen, V. V. Yakovlev, K. R. Wilson, S. D. Carpenter, P. M. Weber, W. S. Warren. Feedback quantum control of molecular electronic population transfer. *Chem. Phys. Lett.*, **280** : 151–158, 1997.
- [5] C. J. Bardeen, V. V. Yakovlev, J. A. Squier, K. R. Wilson. Quantum control of population transfer in green fluorescent protein by using chirped femtosecond pulses. *J. Am. Chem. Soc.*, **120** : 13023–13027, 1998.
- [6] T. Hornung, M. Motzkus, R. de Vivie-Riedle. Adapting optimal control theory and using learning loops to provide experimentally feasible shaping mask patterns. *J. Chem. Phys.*, **115** : 3105–3111, 2001.
- [7] J. Kunde, B. Baumann, S. Arlt, F. Morier-Genoud, U. Siegner, U. Keller. Adaptive feedback control of ultrafast semiconductor nonlinearities. *App. Phys. Lett.*, **77** : 924–926, 2000.
- [8] R. Bartels, S. Backus, E. Zeek, L. Misoguti, G. Vdovin, I. P. Christov, M. M. Murnane, C. Kapteyn. Shaped-pulse optimization of coherent emission of high-harmonic soft X-rays. *Nature*, **406** : 164–166, 2000.

- [9] D. Deutsch. Quantum theory, the Church-Turing principle and the universal quantum computer. *Proc. R. Soc. Lond. A*, **400** : 97–117, 1985.
- [10] P. W. Schor. Algorithms for quantum computation : Discrete logarithms and factoring. In S. Goldwasser, editor, *Proceedings of the 35th Annual Symposium on the Foundation of computer Science*, pages 124–134, Los Alamitos, CA., 1994. IEEE Computer Society.
- [11] F. Laloë C. Cohen-Tanoudji, B. Diu. *Mécanique Quantique*. Hermann, 1977.
- [12] R. Dautray, J-L. Lions. *Analyse mathématique et calcul numérique pour les sciences et les techniques*. Masson, CEA, 1988. Tome 5.
- [13] F. Yip, D. Mazziotti, H. Rabitz. A propagation toolkit to design quantum controls. *J. Chem. Phys.*, **118** (18) : 8168–8172, 2003.
- [14] M. Mirrahimi, G. Turinici, and P. Rouchon. Reference trajectory tracking by Lyapunov function method for pure quantum control designs. *J. Phys. Chem. A*, 109(11) : 2631–2637, 2005.
- [15] R. R. Mohler. *Bilinear control processes*. Mathematics in science and engineering, 1973.
- [16] V. Ramakrishna, M. Salapaka, M. Dahleh, H. Rabitz, A. Pierce. Controllability of molecular systems. *Phys. Rev. A*, **51** (2) : 960–966, 1995.
- [17] F. Albertini, D. D’Alessandro. Notions of controllability for quantum mechanical systems. *Preprint arXiv*, quant-ph/(0106128), 2001.
- [18] S. G. Schrimmer, H. Fu, A. I. Solomon. Complete controllability of quantum systems. *Phys. Rev. A*, **63** : 063410, 2001.
- [19] H. Fu, S. G. Schrimmer, A. I. Solomon. Complete controllability of finite-level quantum systems. *J. Phys. A*, **34** : 1679–1693, 2001.
- [20] G. Turinici. *Analysis of numerical methods of simulation and control in Quantum Chemistry*. PhD thesis, Université Paris 6, Paris, France, 2000.
- [21] G. Turinici. Controllable quantities for bilinear quantum systems. In *Proceedings of the 39th IEEE Conference on decision and Control*, volume 2, pages 1364–1369, Sydney, Australia, December 2000.

-
- [22] G. Turinici. On the controllability of bilinear quantum systems. In M. Defranceschi and C. Le Bris, editors, *Mathematical models and methods for ab initio Quantum Chemistry*, volume 74 of *Lecture Notes in Chemistry*, pages 75–92. Springer, 2000.
- [23] G. Turinici, H. Rabitz. Quantum wavefunction control. *Chem. Phys.*, **267** : 1–9, 2001.
- [24] G. Turinici, H. Rabitz. Wavefunction controllability in quantum systems. *J. Phys. A*, **36** : 2565–2576, 2003.
- [25] J. M. Ball, J. E. Marsden, M. Slemrod. Controlability for distributed bilinear systems. *SIAM J. Control and Optimization*, **20** (4) : 575–597, 1982.
- [26] K. Beauchard, J.M. Coron. Controllability of a quantum particle in a moving potential well. *J. Func. An.*, 2005. *accepté*.
- [27] D. Tannor, V. Kazakov, and V. Orlov. Control of photochemical branching : Novel procedures for finding optimal pulses and global upper bounds. In Broeckhove J. and Lathouwers L., editors, *Time Dependent Quantum Molecular Dynamics*, pages 347–360. Plenum, 1992.
- [28] W. Zhu, H. Rabitz. A rapid monotonically convergent algorithm for quantum optimal control over the expectation value of a definite operator. *J. Chem. Phys.*, **109** : 385–391, 1998.
- [29] Y. Maday, G. Turinici. New formulations of monotonically convergent quantum control algorithms. *J. Chem. Phys.*, **118** (18) : 8191–8196, 2003.
- [30] E. Cancès, C. Le Bris, M. Pilot. Optimal bilinear control for a Schrödinger equation. *C. R. Acad. Sci. Paris*, **330** (Série 1) : 567–571, 2000.
- [31] L. Baudouin, J-P. Puel. Bilinear optimal control problem on a Schrödinger equation with singular potentials. , 2005. *soumis*.
- [32] G. Turinici. Monotonically convergent algorithms bounded quantum controls. In *Proceedings of the LHMNLC03 IFAC conference*, pages 263–266, Sevilla, Spain, 3-5 April 2003.
- [33] Y. Maday, J. Salomon, G. Turinici. Discretely monotonically convergent algorithms in quantum control. In *Proceedings of the LHMNLC03 IFAC conference*, pages 291–293, Sevilla, Spain, 3-5 April 2003.
- [34] Y. Maday, J. Salomon, G. Turinici. Monotonic time-discretized schemes. *Num. Math.*, 2005. *accepté*.

- [35] Y. Ohtsuki, G. Turinici, H. Rabitz. Generalized monotonically convergent algorithms for solving quantum optimal control problems. *J. Chem. Phys.*, **120** (12) : 5509–5517, 2004.
- [36] William H. Press *et al.* *Numerical Recipes in C*. Cambridge University Press. Disponible en ligne : <http://www.library.cornell.edu/nr/cbookcpdf.html>.
- [37] J. Salomon, G. Turinici. Control of molecular orientation and alignment by monotonic schemes. In *Proceedings of the MIC IASTED conference*, pages 291–293, Innsbruck, Austria, 3-5 February 2005.
- [38] J. Salomon, C. M. Dion, G. Turinici. Optimal molecular alignment and orientation through rotational ladder climbing. 2005. *En préparation*.
- [39] P. Rouchon. Control of a quantum particle in a moving potential well. In *Proceedings of the LHMNLC03 IFAC conference*, pages 317–320, Sevilla, Spain, 3-5 April 2003.
- [40] P.M. Morse. *Phys. Rev.*, **34** (57) : , 1929.
- [41] G. K. Paramonov. Coherent control of linear and nonlinear excitation of molecular vibrations. *Chem. Phys.*, **177** (1) : 169–180, 1993.
- [42] R. T. Lawton, M. S. Child. Excited stretching vibrations of water : the quantum mechanical picture. *Mol. Phys.*, **40** : 773–792, 1980.
- [43] P. R. Brooks. Reactions of oriented molecules. *Science*, **193** : 11, 1976.
- [44] A. H. Zewail. Femtochemistry : the role of alignment and orientation. *J. Chem. Soc., Faraday Trans. 2*, **85** : 1221–1243, 1989.
- [45] H. J. Loesch, A. Remscheid. Brute force in molecular reaction dynamics : A novel technique for measuring steric effects. *J. Chem. Phys.*, **93** : 4779–4790, 1990.
- [46] F. J. Aoiz, B. Friedrich, V. J. Herrero, V. S. Rábanos, J. E. Verdasco. Effect of pendular orientation on the reactivity of H + DCl : a quasiclassical trajectory study. *Chem. Phys. Lett.*, **289** : 132–140, 1998.
- [47] M. G. Tenner, E. W. Kuipers, A. W. Kleyn, S. Stolte. Direct inelastic scattering of oriented NO from Ag(111) and Pt(111). *J. Chem. Phys.*, **94** : 5197–5207, 1991.
- [48] T. Seidman. Molecular optics in an intense laser field : A route to nanoscale material design. *Phys. Rev. A*, **56** : R17–R20, 1997.

-
- [49] H. Stapelfeldt, H. Sakai, E. Constant, P. B. Corkum . Deflection of neutral molecules using the nonresonant dipole force. *Phys. Rev. Lett.*, **79** : 2787–2790, 1997.
- [50] C. M. Dion, A. Keller, O. Atabek, A. Bandrauk. Laser-induced alignment dynamics of hcn : Roles of the permanent dipole moment and the polarizability. *Phys. Rev. A*, **59** : 1382–1391, 1999.
- [51] A. Ben Haj-Yedder, A. Auger, C. Dion, E. Cancès, A. Keller, C. Le Bris, O. Atabek. Numerical optimization of laser fields to control molecular orientation. *Phys. Rev. A*, **66** : 063401, 2002.
- [52] C. Dion, A. Ben Haj-Yedder, E. Cancès, C. Le Bris, A. Keller, O. Atabek. Optimal laser control of orientation : The kicked molecule. *Phys. Rev. A*, **65** : 063408, 2002.
- [53] A. Auger, A. Ben Haj-Yedder, E. Cancès, C. Le Bris, C. M. Dion, A. Keller, O. Atabek. Optimal laser control of molecular systems : methodology and results. *Math. Models Methods App. Sci.*, **12** : 1281–1315, 2002.
- [54] K. Hoki, Y. Fujimura. Quantum control of alignment and orientation of molecules by optimized laser pulses. *Chem. Phys.*, **267** : 187–193, 2001.
- [55] R.S. Judson, K.K. Lehmann, H. Rabitz, W.S. Warren . Optimal design of external fields for controlling molecular motion : Application to rotation. *J. of Mol. Struct.*, **223** : 425–456, 1990.
- [56] M. Machholm. Postpulse alignment of molecules robust to thermal averaging. *J. Chem. Phys.*, **115** (23) : 10724–10730, 2001.
- [57] M. B. Priestley. *Spectral Analysis and Time Series*. Academic Press, San diego, 1981.
- [58] J-L. Lions, Y. Maday, G. Turinici. A parareal in time discretization of PDEs. *C. R. Acad. Sci., Paris, Sér. I, Math.*, **332** (7) : 661–668, 2001.
- [59] P. Chartier, B. Philippe. A parallel shooting technique for solving dissipative ODEs. *Computing*, **51** (3-4) : 209–236, 1993.
- [60] Y. Maday, G. Turinici. A parareal in time procedure for the control of partial differential equations. *C. R. Acad. Sci. Paris*, **335** (4) : 387–392, 2002.
- [61] G. Bal, Y. Maday. *Recent developments in domain decomposition methods (Zurich 2001)*, Volume 23 of *lect. Notes Comput. Sci. Eng.*, chapter : A "parareal" time discretization for non-linear PDE's with application to the pricing of an American put , pages 189–202. Springer, Berlin, 2002.

- [62] C. Farhat, M. Chandesris. Time-decomposed parallel time integrators : theory and feasibility studies for fluid, structure, and fluid-structure applications. *Int. J. Numer. Meth. Eng.*, **58** (9) : 1397–1434, 2003.
- [63] G. A. Staff, E. M. Rønquist. Stability of the parareal algorithm. In Springer, editor, *Lecture Notes in Computational Science in Computational Science and Engineering (LNCSE)*, pages 263–266, Berlin, Germany, July 21-25 2003. Fifteen International Conference on Domain decomposition Methods.
- [64] L. Baffico, S. Benard, Y. Maday, G. Turinici, G. Zérah. Parallel in time molecular dynamics simulations. *Phys. Rev. E.*, **66** (057701), 2002.
- [65] Y. Maday, G. Turinici. The parareal in time iterative solver : a further direction to parallel implementation. In *Proceedings of the 15th International Conference on Domain decomposition Methods*, Berlin, Germany, July 21-25 2003.
- [66] G. Turinici, Y. Maday. A parareal in time approach for quantum control : the parareal algorithm. In *Proceedings of the 41th IEEE Conference on decision and Control*, pages 1364–1369, Las Vegas, Nevada, December 2002.
- [67] Y. Maday, G. Turinici. The parareal in time algorithms for quantum control : the parareal time discretization scheme. *Int. J. Quantum. Chem.*, **93** (3) : 223–228, 2003.
- [68] J-L. Lions. Virtual and effective control for distributed systems and decomposition of everything. *J. Anal. Math.*, **80** : 257–297, 2002.
- [69] G. Turinici. Equivalence between local tracking procedures and monotonic algorithms in quantum control. In *Proceedings of the 44th IEEE Conference on decision and Control*, Sevilla, Spain, December 2005. *soumis*.
- [70] T. Cazenave. *Non linear Schrödinger equations*. American mathematical society, 2001.
- [71] N. Dunford, J. Schwartz. *Linear Operators I*. Wiley-interscience, 1964.

Résumé

Nous nous intéressons dans cette thèse à des problèmes liés au contrôle optimal de l'équation de Schrödinger. Apparus dans les années 90, les schémas monotones s'avèrent être un outil efficace pour aborder de telles questions. Pourtant, un certain nombre d'améliorations peuvent encore être apportées à cette classe d'algorithmes. Le travail présenté dans ce mémoire s'est organisé selon trois grands axes. Nous avons tout d'abord tenté de répondre, au moins partiellement, à des questions laissées en suspens dans l'analyse des schémas monotones concernant la discrétisation et la convergence. Un certain nombre de tests ont également été effectués, ce qui a permis de proposer, en collaboration avec des chimistes, de nouvelles approches à des problèmes déjà abordés par d'autres méthodes. Dans certains cas ces expériences numériques ont également conduit à une extension du champ des applications des algorithmes. Enfin des stratégies d'accélération ont été élaborées par couplage de ces schémas avec des schémas de parallélisation.

Mots-clés: Contrôle optimal, contrôle quantique, schémas monotones, schéma pararéel.

