HAL
open science

Développement de nouvelles techniques de contrôle optimal en dynamique quantique : de la Résonance Magnétique Nucléaire à la physique moléculaire

M. Lapert

To cite this version:

M. Lapert. Développement de nouvelles techniques de contrôle optimal en dynamique quantique : de la Résonance Magnétique Nucléaire à la physique moléculaire. Physique Quantique [quant-ph]. Université de Bourgogne, 2011. Français. NNT : . tel-00639508

HAL Id: tel-00639508

https://theses.hal.science/tel-00639508v1

Submitted on 9 Nov 2011

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Université de Bourgogne

Laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne

Thèse

pour obtenir le grade de

Docteur en Physique

par

Marc Lapert

le 12 octobre 2011

Développement de nouvelles techniques de contrôle optimal en dynamique quantique : de la Résonance Magnétique Nucléaire à la physique moléculaire

Directeur de Thèse

Dominique Sugny

O. Atabek	Directeur de Recherche	Examinateur
J.B. Caillau	Professeur	Examinateur
O. Faucher	Professeur	Examinateur
F. Hekking	Professeur	Examinateur
C. Meier	Professeur	Rapporteur
P. Rouchon	Professeur	Rapporteur

Remerciements

Tout d'abord je tiens à remercier vivement Dominique Sugny, mon directeur de thèse pour m'avoir initier au monde de la recherche. Il m'a soutenu tout au long de la thèse avec patience et disponibilité. Un grand merci surtout pour m'avoir aider à corriger et me guider lors de la difficile phase de rédaction.

Je remercie toutes les personnes qui ont constitués le jury lors de ma soutenance, d'une part pour s'être déplacer mais surtout pour avoir lu et critiquer de manière pertinente mon travail pour pouvoir en améliorer la qualité ou du moins essayer. Mes remerciement vont donc vers Osman Atabek qui a présidé le jury, Christoph Meier et Pierre Rouchon pour avoir référé le manuscrit avant soutenance ainsi que les examinateurs Olivier Faucher, Frank Hekking et Jean-Baptiste Caillau.

Je tiens à exprimer mes remerciements au directeur du laboratoire interdisciplinaire Carnot de Bourgogne de m'avoir accueilli dans son laboratoire ainsi que tout le personnel pour sa disponibilité et sa bonne humeur. Je remercie également Hans Jauslin de m'avoir offert l'opportunité de rejoindre l'équipe de dynamique quantique et non-linéaire pour effectuer ma thèse mais également pour avoir participé à la relecture de mon manuscrit.

Durant ces trois années j'ai été amené à collaborer avec de nombreuses personnes et je tiens à toutes les remercier. Je remercie Bernard Bonnard et Jean-Baptiste Caillau pour les différentes discussions et conseils qu'ils ont pu m'apporté pour abordé l'aspect mathématique du contrôle optimal. Je remercie également Stéphane Guérin et Edouard Hertz avec qui j'ai pu étudier le contrôle de la rotation moléculaire. Mes remerciements vont également en directions de Steffen Glaser et Yun Zhang qui ont conduits les expériences de RMN. Bien évidemment je viens de remercier les personnes avec qui j'ai pu travailler directement de manière récurrentes mais je remercie également toutes les autres personnes avec qui j'ai pu travailler soit de manière occasionnelle soit de manière indirecte.

Merci également à tout les thésards que j'ai pu côtoyer durant ma thèse et plus particulièrement tous mes "colocataires" de bureau à savoir Anahit, Ghassen, Vahé et bien évidement Elie et Matthieu mes concurrents dans le tournois de Blobby Volley digestif quasi-quotidien. Grâce à eu j'ai pu passer trois superbes années dans le bureau D103A.

Sur un plan plus personnel, je tiens à faire un clin d'oeil à mes anciens camarades universitaires à savoir Kamal, Constantin, Manuela, Philippe, Romaric. Une dédicace également à tous mes amis de longue date, c'est-à-dire tous les "Jack", Romain, Nico, Math, Seb de m'avoir sortie un peu du monde de la recherche pour garder une vie sociale même si parfois le matin été plus difficile. Je n'oublie pas non plus toute ma famille, notamment mes parents qui m'ont soutenus dans mes choix tout au long de mes études mais également mon frère et mes soeurs. Je pense également à ma belle famille et surtout Anne-Sophie ma compagne de m'avoir supporté particulièrement pendant la rédaction du présent manuscrit qui a pu être parfois interminable.

Table des matières

1. Introduction . . . 9

2. Outils de contrôle optimal . . . 17

2.1 Introduction . . . 17

2.2 Contrôlabilité des systèmes quantiques . . . 18

2.3 Définition d'un problème de contrôle optimal . . . 20

2.4 Contrôle géométrique . . . 22

2.4.1 Introduction au Principe du maximum de Pontryagin . . . 22

2.4.2 Contrôle en temps optimal d'un système sur $\mathbb{R}^2$ . . . 25

2.4.3 Méthode de tir . . . 29

2.4.4 Méthode d'homotopie . . . 31

2.5 Méthodes numériques . . . 32

2.5.1 Algorithme monotone . . . 32

2.5.2 Algorithme GRAPE . . . 36

2.6 Comparaison des algorithmes de type monotones et de type gradient . . . 39

2.7 Différence qualitative entre le tir et les méthodes itératives . . . 39

3. Contrôle optimal en Résonance Magnétique Nucléaire . . . 41

3.1 Introduction . . . 41

3.2 Dynamique des spins en résonance magnétique nucléaire . . . 41

3.2.1 Construction du Modèle . . . 41

3.2.2 Effet de la température . . . 46

3.2.3 Principe de la RMN . . . 48

3.2.4 Principe de l'IRM . . . 49

3.2.5 Normalisation de l'équation de Bloch . . . 51

3.2.6 Effet de l'inhomogénéité des champs magnétiques . . . 53

3.2.7 Effet du radiation damping . . . 55

3.3 Contrôle en temps minimum . . . 56
3.3.1 Introduction . . . 56
3.3.2 Contrôle optimal géométrique . . . 57
3.3.3 Construction de la synthèse optimale . . . 60
3.3.4 Saturation d'un spin 1/2 . . . 62
3.4 Rôle de l'effet de radiation damping . . . 68
3.4.1 Cas $k > 0$ et point fixe simple . . . 70
3.4.2 Cas $k < 0$ et point fixe triple . . . 75
3.5 Optimisation du contraste en IRM . . . 77
3.5.1 Introduction . . . 77
3.5.2 Contrôle géométrique du contraste . . . 78
3.5.3 Résultat numérique du problème de contraste . . . 81
3.5.4 Construction de la solution BSBS . . . 83
3.5.5 Implémentation expérimentale . . . 85
3.5.6 Conclusion . . . 89

4. Contrôle optimal de la rotation moléculaire par champ laser . . . 91
4.1 Introduction . . . 91
4.2 Contexte du contrôle moléculaire . . . 91
4.3 Modèle physique . . . 93
4.3.1 Dynamique libre de la rotation des molécules . . . 94
4.3.2 Interaction du rotateur rigide avec un champ électrique . . . 97
4.4 Algorithme monotone avec contraintes spectrales . . . 100
4.4.1 Description de l'algorithme . . . 100
4.4.2 Application à température nulle . . . 102
4.4.3 Application au cas du pulse-shaping . . . 106
4.5 Délocalisation planaire . . . 108
4.5.1 Construction de l'état d'alignement planaire . . . 108
4.5.2 Contrôle optimal de l'alignement planaire . . . 110
4.5.3 Délocalisation planaire : Expérience . . . 115
4.6 Roues dentées quantiques . . . 118
4.6.1 Construction de l'état roue dentée . . . 118
4.6.2 Stratégies de contrôle . . . 122
4.6.3 Extension au cas des molécules symétriques et asymétriques . . . 122

4.7 Conclusion 125

5. Contrôle optimal des condensats de Bose-Einstein 127

5.1 Introduction 127

5.2 Introduction du modèle 127

5.2.1 Modèle quantique 129

5.2.2 Modèle semi-classique 131

5.2.3 Information de Fisher 134

5.3 Contrôle optimal d'une superposition quantique macroscopique 135

5.3.1 Contrôle optimal géométrique 135

5.3.2 Contrôle optimal par algorithme numérique 144

5.4 Discussion 146

6. Comparaison du contrôle optimal géométrique avec d'autres méthodes de contrôle 149

6.1 Comparaison des méthodes de contrôle optimal géométrique et numérique 149

6.1.1 Cas du temps minimum 150

6.1.2 Cas de l'énergie minimum 152

6.1.3 Conclusion 156

6.2 Comparaison avec le contrôle local 156

6.2.1 Introduction au contrôle local 157

6.2.2 Comparaison des méthodes de contrôle optimal et local 158

6.2.3 Conclusion 163

7. Conclusion 165

8. Annexe 171

8.1 Détermination des points fixes de l'équation de Bloch non-linéaire 171

8.2 Construction de la synthèse optimale dans le cas non-linéaire 172

8.3 Fonction de tir du problème du contraste 174

8.3.1 Légende 174

8.3.2 Fonction de tir en temps libre 175

8.3.3 Fonction de tir en temps fixe 176

8.4 Split-Operator 177

8.5 Approximation de Galerkin 178

8.6 Projection des opérateurs $\cos\theta$ dans la base des harmoniques sphériques $\{|j,m\rangle\}$ . . . 179

8.7 Relation de passage entre espace $\{j, m\}$ et espace symétrisé. 181
8.8 Projection des cosinus directeurs dans la base $\{|j, k, m\rangle\}$ 183
8.9 Expression des opérateurs de moment angulaire dans la base de Wigner 185
8.10 Expression de quelques matrices $D^1_{m,k}$ 185
8.11 Expression des carrés des cosinus directeurs. 188

Chapitre 1

Introduction

Ce manuscrit présente une synthèse des activités de recherche que j'ai pu mener durant ma thèse au laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne à Dijon. Ce travail est centré sur le développement de nouvelles techniques de contrôle optimal et leurs applications à la dynamique quantique de système s'étendant de la physique moléculaire à la résonance magnétique nucléaire.

L'application de la théorie du contrôle optimal [1, 2] regroupe un nombre de sujets et de domaines extrêmement vastes. L'économie, la mécanique spatiale et aérospatiale ainsi que la mécanique quantique, pour n'en citer que quelques-uns, constituent déjà un éventail très large du sujet.

Le contrôle en mécanique spatiale [3] a pour but le contrôle des trajectoires des objets artificiels en mouvement dans l'espace, par exemple le contrôle optimal du transfert orbital d'un satellite. L'application de la théorie du contrôle optimal dans ce domaine a donné lieu à de nombreux résultats de contrôle [4, 5] et à la création d'outils extrêmement précis et performants [6]. De nombreux outils utilisés dans ce domaine font partie du contrôle géométrique. Ici, géométrique signifie qu'une analyse géométrique du problème est réalisée pour analyser la structure de l'ensemble des extrémales du problème. Cette analyse donne, en général, beaucoup d'informations lorsque le nombre de degrés de liberté du système est petit. Si ce dernier est trop grand, il faut alors envisager une méthode purement numérique. Le développement de tels outils de contrôle optimal est crucial car le coût financier de l'envoi de charge utile dans l'espace est de l'ordre voir supérieur à 10000€/kg, tout en sachant que le poids d'un satellite dépasse souvent une tonne. Il est alors facile de comprendre que le changement d'orbite d'un satellite coûte très cher. De plus, il est en général impossible ou trop cher de realimenter un satellite en combustible. Sa durée de vie est alors limitée par son usure mais aussi par la quantité de carburant qu'il embarque. Il est alors nécessaire d'utiliser la théorie du contrôle optimal pour minimiser le coût de l'envoi du satellite dans l'espace, ainsi que sa consommation de carburant dans l'espace, pour prolonger sa durée de vie.

En parallèle, le contrôle quantique dans les systèmes atomiques et moléculaires est apparu durant les années 80 [7, 8]. C'est vers la fin de cette période qu'est apparu pour la première fois le contrôle

optimal dans cette communauté [9]. Il faut distinguer deux grandes catégories de problèmes suivant le temps caractéristique de contrôle. Pour des systèmes atomiques et moléculaires en phase gazeuse dont on cherche à contrôler la dynamique électronique, vibrationnelle ou rotationnelle, le temps typique d'un laser de contrôle sera de l'ordre de la nanoseconde à la femtoseconde. Dans les systèmes de résonance magnétique nucléaire dans lesquels le spin nucléaire est contrôlé, le temps caractéristique du contrôle sera de l'ordre de la microseconde à la seconde. Ces deux temps caractéristiques entraînent des contraintes différentes dans ces deux domaines.

Dans le premier cas, cette courte durée nécessite un contrôle par champ laser rapide voire ultra-rapide et une modulation directe, c'est-à-dire temporelle, du contrôle n'est alors pas envisageable. Les dispositifs électroniques ne peuvent généralement pas répondre plus vite que la nanoseconde. Il faut alors recourir soit à des stratégies de contrôle simples constituées de une ou plusieurs impulsions de courte durée dites "kick", soit à des techniques dites de pulse-shaping dans lesquelles le spectre de l'impulsion est mis en forme à l'aide de réseaux et de masques à cristaux liquides pour contrôler sa forme temporelle. Dans ce cas, des méthodes heuristiques comme les algorithmes génétiques sont utilisées afin de trouver un contrôle adéquat [10]. La solution est calculée itérativement. Ces méthodes ont l'avantage de pouvoir être utilisées directement expérimentalement, c'est-à-dire que la dynamique n'est pas simulée numériquement mais la mesure expérimentale sert de coût à optimiser. C'est ce que l'on appelle des expériences en boucle fermée, le système apprend par lui-même quelle solution est la meilleure. Cela constitue une différence majeure avec le domaine de la mécanique spatiale dans lequel il faut nécessairement connaître une solution à l'avance. On appelle ce type de contrôle des contrôles en boucle ouverte. En général, il est tout de même nécessaire d'utiliser des méthodes de feedback pour stabiliser le système. Cela permet également d'éviter, par exemple, qu'une erreur de trajectoire due à des perturbations devienne dominante. C'est sans doute une des raisons pour laquelle des outils précis et efficaces ont surtout été développés dans le cadre de la dynamique spatiale où l'erreur doit être minimisée pour éviter un coût financier important, contrairement à la dynamique quantique pour laquelle des outils plus simples ont été utilisés jusqu'à présent. Une autre raison est liée aussi, bien évidemment, à la taille du système. En mécanique spatiale, le nombre de degrés de liberté est en général assez limité tandis que pour un système quantique le nombre de niveaux peut être gigantesque, et dans ce cas, les méthodes de contrôle utilisées en mécanique spatiale telles que le contrôle géométrique ne sont pas applicables.

Dans le second cas, une mise en forme directe est possible et permet alors de générer des variations instantanées du contrôle (comparées au temps caractéristique du système). De la même façon qu'en mécanique spatiale où la direction de poussée pourra commuter en éteignant un moteur et en allumant

un second, le temps de cette commutation est instantané comparé au temps caractéristique d'évolution du système. Dans un système de résonance magnétique nucléaire (RMN), le temps caractéristique de contrôle sera de l'ordre de la seconde et dans ce cas, les dispositifs électroniques peuvent être utilisés pour effectuer la mise en forme du contrôle car ils peuvent réagir suffisamment rapidement. Il faut remarquer que des commutations rapides, dites bang-bang, qui seront rencontrées dans le cadre du contrôle optimal avec une borne sur le champ, sont utilisables dans un appareil de RMN commercial.

Le contrôle quantique recouvre un très grand nombre de sujets. Cela passe du contrôle atomique et moléculaire, par exemple la rotation moléculaire [11, 12], en passant par le contrôle de systèmes supraconducteurs [13] jusqu'aux systèmes de spins en résonance magnétique nucléaire [14] et en Imagerie par Résonance Magnétique (IRM). Un large champ d'applications potentielles est donc envisageable en passant de la métrologie pour les supraconducteurs jusqu'à la médecine pour les systèmes de spins en IRM.

Il ne faut pas perdre de vue que l'objectif du contrôle optimal est de trouver une forme de contrôle qui sera solution d'un problème réel et implémentable expérimentalement. Il faut donc que le résultat obtenu soit réaliste pour pouvoir envisager de le tester expérimentalement. Pour cela, il faut respecter plusieurs contraintes. La première est la précision du modèle théorique. En effet, lors de la dérivation du modèle de nombreuses approximations peuvent être effectuées. Il est également nécessaire que les paramètres utilisés dans le modèle pour décrire l'interaction entre le système et le contrôle soient connus théoriquement ou expérimentalement. Finalement vient la question du temps caractéristique du contrôle et donc de la possibilité de le générer expérimentalement. Si ces différents critères sont réunis il est alors envisageable de pouvoir utiliser les résultats de contrôle optimal expérimentalement.

Dans le but de pouvoir envisager des expériences, les trois exemples suivants ont été retenus dans ce manuscrit. Le premier correspond à la dynamique des spins en phase liquide dans une expérience de RMN. Ce modèle est pratique car la fréquence propre des noyaux de spins 1/2 ainsi que les paramètres dissipatifs sont généralement bien connus. De plus, l'équation de Bloch permet de prédire avec beaucoup de précision les résultats expérimentaux. Le second modèle correspond à la rotation moléculaire en phase gazeuse. Les paramètres sont bien connus expérimentalement, et/ou théoriquement, induisant un bon accord théorie/expérience. Les deux sujets ont déjà été très étudiés du point de vue du contrôle mais pas nécessairement du point de vue du contrôle optimal, et notamment des méthodes géométriques. Le dernier modèle que l'on considèrera correspond à un condensat de Bose-Einstein dans un double puits de potentiel. Dans ce cas, le but sera d'utiliser le contrôle optimal pour générer

une superposition d'états plus rapidement que les solutions existantes dans la littérature [15].

De plus, l'application du contrôle optimal en dynamique quantique nécessite de pouvoir calculer l'évolution dynamique du système en un temps raisonnable. En effet, les algorithmes numériques de contrôle optimal nécessitent un grand nombre de propagations pour construire la solution finale, ce qui rend ce dernier critère particulièrement crucial. Il faut également se poser la question de la contrôlabilité du système. Basiquement ce concept permet, en utilisant la forme de la dynamique libre et de la partie d'interaction, de savoir si partant d'un point, il est possible de générer un contrôle dans toutes les directions de l'espace du système. On peut également savoir si l'état initial et l'état final requis évolues dans le même espace, autrement dit si l'état cible est accessible depuis l'état initial. L'étude de la contrôlabilité permet de savoir si une solution au problème de contrôle existe, mais elle ne nous dira rien sur la forme de cette solution. Il s'agit donc seulement d'une étude préliminaire avant l'application des outils de contrôle optimal.

Cette thèse aura pour but d'appliquer des méthodes de contrôle novatrices issues en partie de la mécanique spatiale à des systèmes quantiques mais également de proposer des solutions originales à des problèmes de contrôle quantique dans lesquels seules des réponses intuitives ou qualitatives existent. Un second objectif sera de développer de nouvelles méthodes et de nouveaux concepts dans le contexte du contrôle optimal. Ce manuscrit sera organisé de la manière suivante : le premier chapitre de cette thèse introduira les outils de contrôle optimal qui seront utilisés par la suite. On détaillera notamment le principe du maximum de Pontryagin ainsi que le cadre mathématique qui permet de faire une analyse géométrique des problèmes de contrôle optimal. Les différents outils nécessaires seront présentés sommairement, c'est-à-dire que les notations seront allégées autant que possible et aucune démonstration ne sera effectuée. Des algorithmes numériques seront également présentés et un parallèle entre les points de vue géométrique et numérique sera fait afin de bien comprendre la différence entre ces deux approches. Les chapitres suivants seront consacrés à l'application des outils de contrôle à des systèmes quantiques.

Le second chapitre exposera les résultats obtenus dans le cadre du contrôle de la dynamique des spins en RMN et IRM. Il débutera par une présentation détaillée du modèle physique puis présentera les résultats obtenus pour saturer l'aimantation d'un spin dans une expérience de RMN. Saturer signifie que l'on cherche à annuler une partie du signal expérimental pour en améliorer la qualité. Une extension de ces résultats à une dynamique incluant des termes non-linéaires dus au processus de mesure sera exposée. Pour terminer ce chapitre, nous passerons de la RMN à l'IRM en présentant les

résultats obtenus dans le cadre de la maximisation du contraste entre deux milieux différents. L'idée est de maximiser le contraste entre deux espèces présentes, par exemple dans le cerveau, en préparant l'échantillon avant la mesure. Ceci améliora la lisibilité de l'image d'IRM obtenue.

Le troisième chapitre traite du contrôle de la rotation moléculaire. Il débutera par une introduction au modèle physique décrivant la rotation des molécules et l'interaction avec le laser. Ensuite, une nouvelle forme d'algorithme numérique sera présentée, elle permet de prendre en compte des contraintes spectrales. Ce problème, et ce chapitre en général, permettent de mettre en avant la difficulté de la mise en forme du champ de contrôle lorsque les durées caractéristiques du système deviennent trop courtes. Un nouvel état où la molécule est confinée dans un plan de manière permanente est construit ainsi qu'une méthode pour construire un champ de contrôle l'atteignant est également développée. L'expérience implémentant la solution de contrôle obtenue est présentée.

Le quatrième chapitre, quant-à-lui, est consacré à l'étude de la création de superposition d'états macroscopiques dans les condensats de Bose-Einstein à deux composantes en temps minimum. Cette étude est très utile, car elle permet de trouver une nouvelle forme de contrôle implémentable expérimentalement, forme qui est optimisée par rapport aux solutions existantes dans la littérature. Cette étude permet également de faire une connexion entre les méthodes géométriques et numériques. En effet, un modèle semi-classique est considéré pour dériver une première forme de champ de contrôle à partir de l'approche géométrique. Ensuite la solution obtenue est utilisée pour initialiser l'algorithme numérique qui traitera le modèle quantique.

Le dernier chapitre permet de comparer la méthode de contrôle géométrique à d'autres méthodes de contrôle. La première comparaison sera effectuée entre la méthode géométrique et la méthode numérique GRAPE (GRadient Ascent Pulse Engeenering). La comparaison sera ensuite faite avec une méthode de contrôle local. Cela permettra de mettre en avant les avantages et les inconvénients de chacune des méthodes et également de discuter la façon d'envisager des combinaisons de celles-ci. Ce chapitre s'appuiera sur des systèmes de RMN. Nous arriverons finalement à la conclusion qui permettra de donner une perspective à ce travail pour tracer les futurs axes de recherches.

Ces trois années de recherche ont permis d'aboutir à l'ensemble des publications suivantes. Elles sont classées en fonction de leurs affiliations aux chapitres.

Second chapitre :

- M. Lapert, Y. Zhang, M. Braun, S. J. Glaser and D. Sugny, **Singular extremals for the time optimal control of dissipative spin-**1/2 **particles**, PHYSICAL REVIEW LETTERS 104, 083001 (2010)

Résumé : La solution saturant en temps minimum un spin 1/2 résonant avec le champ et en présence de dissipation est présentée. Cet article introduit dans la communauté du contrôle quantique la notion de champ singulier appliqué à un cas physique concret simple. La solution théorique est implémentée expérimentalement.

– M. Lapert, Y. Zhang, S. J. Glaser and D. Sugny, **Towards the time-optimal control of dissipative spin 1/2 particules in Nuclear Magnetic Resonance**, JOURNAL OF PHYSICS B (to be published)
Résumé : Cet article présente les détails de la solution de saturation en temps minimum d'un spin 1/2 résonant avec le champ et en présence de dissipation. L'application du contrôle géométrique à ce type de système est présentée.

– Y. Zhang, M. Lapert, M. Braun, S. J. Glaser and D. Sugny, **Time-optimal control of spin-1/2 particles in the presence of radiation damping and relaxation**, THE JOURNAL OF CHEMICAL PHYSICS 134, 054103 (2011)
Résumé : Cet article généralise les résultats de la saturation mais cette fois en ajoutant des termes non-linéaires dans la dynamique du spin qui sont liés à la mesure de l'aimantation. Les solutions théoriques sont implémentées expérimentalement.

– B. Bonnard, O. Cots, S. J. Glaser, M. Lapert, D. Sugny and Y. Zhang, **Geometric optimal control of the contrast imaging problem in Nuclear Magnetic Resonance**, submitted to IEEE TRANSACTIONS ON AUTOMATIC CONTROL
Résumé : Les résultats mathématiques du problème de contraste sont présentés ainsi que les premières solutions obtenues. Le concept de pont est également introduit. Cette trajectoire utilise un contrôle bang pour relier deux trajectoires singulières.

Troisième chapitre :

– M. Lapert, R. Tehini, G. Turinici, and D. Sugny, **Monotonically convergent optimal control theory of quantum systems under a nonlinear interaction with the control field**, PHYSICAL REVIEW A 78, 023408 (2008)
Résumé : Nous développons une extension des algorithmes monotones pour traiter des problèmes quantiques dont l'interaction n'est pas linéaire vis-à-vis du champ. La construction de l'algorithme est générale et permet de retrouver le cas linéaire généralisé. Le cas de la rotation

moléculaire est traité en exemple.

– M. Lapert, R. Tehini, G. Turinici, and D. Sugny, **Monotonically convergent optimal control theory of quantum systems with spectral contraints on the control fields**, PHYSICAL REVIEW A 79, 063411 (2009)
Résumé : Un algorithme monotone permettant de prendre en compte les contraintes spectrales du champ de contrôle est construit. Cet algorithme est appliqué au cas de la rotation d'une molécule.

– M. Lapert, E. Hertz, S. Guérin, and D. Sugny, **Field-Free permanent molecular planar alignment**, PHYSICAL REVIEW A 80, 051403 (2009)
Résumé : Nous construisons le premier état rotationnel moléculaire avec une délocalisation planaire en l'absence de champ. Des stratégies de contrôle optimal et des stratégies multi-impulsions simples sont proposées.

– M. Lapert, S. Guérin and D. Sugny, **Field-free quantum cogwheel by shaping of rotational wave packets**, PHYSICAL REVIEW A 83, 013403 (2011)
Résumé : Un protocole pour construire des états de rotation moléculaire en forme de roue dentée est construit. Le qualificatif de roue dentée signifie que la densité de probabilité angulaire est alignée simultanément selon n axes dans un même plan.

– Md. Z. Hoque, M. Lapert, E. Hertz, F. Billard, D. Sugny, B. Lavorel, and O. Faucher, **Observation of laser-induced field-free permanent planar alignment**, PHYSICAL REVIEW A 13, 073001 (2011)
Résumé : Les résultats de **Field-Free permanent molecular planar alignment** sont implémentés expérimentalement au cas de la molécule CO_2. Une très bonne délocalisation planaire est obtenue pour une température de 100K.

Quatrième chapitre :

– M. Lapert, G. Ferrini and D. Sugny, **Optimal control of quantum superpositions in a bosonic Josephson junction**, submitted to PHYSICAL REVIEW A
Résumé : La construction d'une superposition macroscopique d'états dans un condensat de Bose-Einstein à deux modes est réalisée. Le contrôle géométrique est utilisé pour construire une

solution en temps minimum pour un modèle semi-classique. Cette solution est ensuite utilisée pour initialiser un algorithme monotone et déterminer une solution optimale pour la dynamique quantique. Ces résultats généralisent les méthodes de contrôle connues dans la littérature.

Cinquième chapitre :

– M. Lapert, Y. Zhang, M. Braun, S. J. Glaser and D. Sugny, **Geometric versus numerical optimal control of dissipative spin-**1/2 **particle**, PHYSICAL REVIEW A 82, 063418 (2010)
Résumé : Une comparaison entre la méthode d'optimisation numérique GRAPE et les outils de contrôle géométrique est effectuée. L'exemple de la saturation d'un spin 1/2 est utilisé. Nous concluons cet article par différentes perspectives sur la complémentarité des deux méthodes et sur les possibilités de couplage pour bénéficier de leurs avantages respectifs. Une implémentation expérimentale efficace est effectuée pour minimiser l'énergie du champ dans le cas de la saturation d'un spin 1/2.

– F. Mintert, M. Lapert, Y. Zhang, S. J. Glaser, D. Sugny, **Saturation of a spin 1/2 particle by generalized Local control**, NEW JOURNAL OF PHYSICS 13, 073001 (2011)
Résumé : Une comparaison entre une méthode de contrôle local généralisée et les outils du contrôle géométrique est effectuée. L'exemple de la saturation d'un spin 1/2 est utilisé.

Chapitre 2

Outils de contrôle optimal

2.1 Introduction

Ce chapitre présente les différentes techniques de contrôle optimal utilisées dans ce travail de thèse. Toutes ces méthodes sont basées sur le principe du maximum de Pontryagin (PMP) qui est la version mathématique la plus aboutie pour déterminer les trajectoires optimales d'un système contrôlé décrit par des équations aux dérivées ordinaires. Elles peuvent se décomposer en deux grandes classes : les approches géométriques et les approches numériques. Dans le premier cas, le but est de résoudre analytiquement (ou bien avec une très grande précision numérique) les équations optimales. L'utilisation d'outils mathématiques issus de la géométrie différentielle ou de la mécanique hamiltonienne permet d'obtenir des résultats d'optimalité locale ou globale, de déterminer la structure des trajectoires optimales (en terme d'arcs réguliers et singuliers) et d'obtenir les limites physiques d'un processus donné (temps minimum pour réaliser un contrôle donné, efficacité maximale qui peut être obtenue en un temps précis). Du fait de leur caractère géométrique intrinsèque, ces méthodes puissantes sont limitées à des systèmes ayant un petit nombre de degrés de liberté. Pour des systèmes plus complexes, cette approche est remplacée par des algorithmes itératifs purement numériques. Ces méthodes ont l'avantage de donner des solutions à des problèmes extrêmement compliqués. Le prix à payer est alors une perte d'information d'un point de vue physique et mathématique sur cette solution. Dans la littérature du contrôle quantique, on distingue deux grands types d'algorithmes : les algorithmes monotones et les algorithmes de type GRAPE (GRadient Ascent Pulse Engineering) qui se différencient par leurs caractères séquentiel ou simultané.

Toutes ces méthodes et concepts, décrit seulement brièvement dans cette introduction, seront détaillés dans ce chapitre. Nous prévenons le lecteur que nous ne présenterons pas dans ce chapitre les différentes démonstrations établissant les propriétés du contrôle optimal. Le but est seulement d'introduire de manière aussi claire et simple que possible les différents outils nécessaires pour aborder un problème de contrôle optimal. Pour cette raison, seuls les résultats de la théorie du contrôle optimal seront présentés. La rédaction de ce chapitre est plutôt destinée à un public de physiciens, la littérature

mathématique sur le sujet étant déjà extrêmement bien fournie.

La théorie du contrôle optimal traite en général de systèmes dont la dynamique est décrite par une équation différentielle ordinaire. Dans le cadre du contrôle quantique, ceci correspond aux systèmes de dimension finie, *i.e.* gouvernés par un Hamiltonien avec un spectre discret et possédant un nombre fini de niveaux. Le traitement d'un problème de contrôle dont la dynamique est décrite par une équation aux dérivées partielles est très différent d'un point de vue mathématique. Il ne sera pas abordé dans cette thèse. Nous utiliserons une approximation à dimension finie pour étudier les systèmes dont l'espace de Hilbert naturel est de dimension infinie. Ce point sera détaillé dans le cadre du contrôle par champ laser de la rotation d'une molécule dans le chapitre 4.

2.2 Contrôlabilité des systèmes quantiques

Avant de s'intéresser à la résolution proprement dite d'un problème de contrôle optimal, une première étape consiste à étudier la contrôlabilité du système considéré, *i.e.* déterminer jusqu'à quel point il est possible de manipuler la dynamique du système.

Nous restreignons ce bref exposé aux systèmes quantiques dont l'espace de Hilbert est de dimension finie. La question de la contrôlabilité en dimension infinie est beaucoup plus complexe et généralement, seuls des résultats de contrôlabilité approchée peuvent être établis [16]. Dans ce cas, la cible ne peut pas être atteinte exactement mais la distance entre l'état final et la cible peut être approchée avec une précision arbitrairement petite. Des résultats de contrôlabilité exacte peuvent être obtenus en dimension finie.

Nous considérons pour cela un système quantique décrit par un opérateur densité $\hat{\rho}$, l'espace des états étant un espace de Hilbert de dimensions N. Cet opérateur satisfait une équation de type Liouville-von Neumann de la forme :

$$\mathrm{i}\,\frac{\partial}{\partial t}\hat{\rho}(t) = \left[\hat{H}(t), \hat{\rho}(t)\right] + \mathrm{i}\,\mathcal{L}\left[\hat{\rho}(t)\right] \tag{2.1}$$

où le premier terme du second membre détermine l'évolution unitaire du système et le second correspond à la partie dissipative. $\mathcal{L}$ est un opérateur agissant sur l'espace des matrices densité. $\hat{H}(t)$ est l'Hamiltonien du système que l'on supposera de la forme :

$$\hat{H}(t) = \hat{H}_0 + u(t)\hat{H}_1, \tag{2.2}$$

où $\hat{H}_0$ est l'Hamiltonien libre du système et $\hat{H}_1$ l'opérateur décrivant l'interaction du système avec

le champ. En l'absence d'effets dissipatifs, l'évolution du système est unitaire et l'opérateur densité vérifie :

$$\hat{\rho}(t) = \hat{U}(t, t_0)\hat{\rho}_0\hat{U}(t, t_0)^\dagger, \tag{2.3}$$

où $\hat{\rho}_0$ représente l'état initial du système et $\hat{U}(t, t_0)$ est l'opérateur d'évolution qui appartient au groupe unitaire $\mathbf{U}(N)$. La contrainte sur l'évolution unitaire implique des restrictions importantes sur les opérateurs densités qui peuvent être atteints à partir de $\hat{\rho}_0$ et cela indépendamment de $\hat{H}_0$ et $\hat{H}_1$. En particulier, il faudra que les états initiaux et finaux aient les mêmes valeurs propres.

Considérons un système fermé sans dissipation. On dira que le système quantique est complètement contrôlable si pour tout opérateur d'évolution $\hat{U}$, il existe un contrôle $u(t)$ permettant d'atteindre exactement $\hat{U}$ en partant de l'opérateur identité $\mathbb{1}$. Rappelons que les opérateurs d'évolution satisfont :

$$\mathrm{i}\,\frac{\partial}{\partial t}\hat{U}(t, t_0) = \hat{H}(t)\hat{U}(t, t_0). \tag{2.4}$$

Cette notion de contrôlabilité peut être reliée au groupe et à l'algèbre de Lie du système. L'algèbre de Lie L est générée par les opérateurs anti-hermitiens $\mathrm{i}\,\hat{H}_0$ et $\mathrm{i}\,\hat{H}_1$ et le groupe de Lie se déduit de l'algèbre par exponentiation. On peut alors montrer que le système quantique est complètement contrôlable si et seulement si $L = \mathfrak{u}(N)$, ce qui peut se vérifier en général assez directement en calculant la dimension de L. Les systèmes quantique considérés sont généralement complètement contrôlables. Les systèmes non contrôlables auront des symétries particulières comme cela peut être le cas de l'oscillateur harmonique [17].

La situation est assez différente pour les systèmes dissipatifs. Peu de résultats sont connus dans ce cas. Nous considèrerons uniquement le cas où dans l'équation (2.1), $\mathcal{L}$ est un opérateur de Lindblad [18]. Dans cette situation, on peut montrer que les systèmes quantiques ne sont génériquement pas contrôlables à cause d'une absence de contrôlabilité locale. L'évolution unitaire liée au contrôle ne pouvant pas annuler l'effet de la dissipation qui est par essence non unitaire, l'opérateur densité ne peut pas se déplacer dans toutes les directions de son espace des états. Cependant la dissipation peut également avoir des effets positifs. Elle permet ainsi d'atteindre des états qui n'auraient pas pu l'être en absence de dissipation comme par exemple des matrices densités ayant des valeurs propres différentes.

Pour les systèmes dissipatifs, la notion la plus importante n'est donc peut-être pas celle de contrôlabilité mais celle d'ensemble accessible qui représente l'ensemble des états atteignables à partir d'un état initial $\hat{\rho}_0$ sous l'effet de contrôle $u(t)$. Ce point sera détaillé dans le chapitre 3.

2.3 Définition d'un problème de contrôle optimal

Nous rappelons dans cette section comment définir un problème de contrôle optimal pour un système dynamique contrôlé. Pour ce type de système, se donnant un état initial et un état final, un problème de contrôle consiste à modifier l'état du système à l'aide d'un paramètre externe dépendant du temps, par exemple un champ laser, pour que le système atteigne l'état final. Dans la suite, on utilisera le terme contrôle pour définir ce paramètre et son évolution temporelle. Un problème de contrôle optimal est principalement défini par deux objets. Le premier est la dynamique du système [1] qui dicte son évolution temporelle. Le second est la fonctionnelle de coût. Elle s'exprime de manière générale en une somme de deux termes, le premier étant un terme qui détermine la qualité de la solution obtenue à l'instant final tandis que le second détermine la qualité de la solution le long de la trajectoire suivie. L'objectif du contrôle optimal sera de déterminer un contrôle qui permet de manipuler le système selon sa dynamique tout en minimisant la fonctionnelle de coût, c'est-à-dire déterminer une solution ayant une qualité optimales. Mathématiquement, le problème se formule de la façon suivante :

$$\begin{cases} C(x,u) &= g(x(t_f)) + \displaystyle\int_0^{t_f} \mathrm{d}t f^0(x(t),u(t)) \\ \dot{x} &= f(x(t),u(t)) \\ x(0) &= x_0 \end{cases}, \tag{2.5}$$

avec t_f la durée du contrôle qui peut être fixée ou non, $x \in \mathbb{R}^n$ l'état du système, $f(x(t),u(t))$ la dynamique du système qui dépend de l'état du système et d'un paramètre $u(t)$ qui dépend du temps, $u(t) \in U$ le contrôle avec U désignant l'ensemble des valeurs admissibles pour le contrôle. Comme son nom l'indique, c'est le paramètre $u(t)$, qui est externe au système, qui permet de piloter la dynamique du système et l'évolution de l'état $x(t)$. Dans le cadre des applications en contrôle quantique, on pourra se limiter pour le contrôle à l'ensemble des fonctions continues par morceaux. Ce sont ce type de fonctions qui sont implémentables expérimentalement comme nous le verrons dans le chapitre 4. Ces contrôles sont à valeur dans un ensemble $U \subset \mathbb{R}^k$ où k désigne le nombre de composantes du contrôle. Cet ensemble peut être soit ouvert tel que $\mathbb{R}$ soit un domaine fermé dans le cas où une borne sur la valeur du contrôle est imposée. C'est le cas, par exemple, lorsque $u(t) \in [-m, m]$. Si le contrôle appartient à ce dernier alors il est dit admissible. La fonction $f(x(t),u(t))$ gouverne la dynamique du système [2] et $g(x(t_f))$ est un coût terminal qui décrit la qualité finale de la solution, par exemple la

1. La théorie du contrôle optimal traite en général des systèmes dont la dynamique est décrite par une équation différentielle ordinaire. Le traitement d'un problème de contrôle pour une dynamique décrite par une équations aux dérivées partielles est très différent d'un point de vue mathématique. Il ne sera pas abordé dans cette thèse.

2. On suppose ici que le système est piloté par un unique contrôle réel $u(t)$ mais il est possible de considérer le cas à k contrôles réels.

distance entre l'état du système au temps final et une cible x_f. Enfin la fonction $f^0(x(t), u(t))$ est un coût dépendant du chemin qui peut par exemple décrire l'énergie utilisée pour contrôler le système. Dans ce cas, $f^0(x(t), u(t)) = u^2$ et $\int_0^{t_f} \mathrm{d}t f^0(x(t), u(t))$ correspond à l'énergie utilisée par le contrôle. La fonction f^0 peut également décrire la durée du contrôle si $f^0(x(t), u(t)) = 1$ et $\int_0^{t_f} \mathrm{d}t f^0 = t_f$. Le problème d'optimisation lui même s'exprime simplement de la façon suivante :

$$u = \arg\min(C(x, v)), \tag{2.6}$$

u étant dans ce cas la solution minimisant le coût $C(x, v)$ parmi les solutions réalisant v le contrôle souhaité.

On constate que cette définition d'un problème de contrôle optimal est très générale et ne dépend ni de la forme du coût considéré ni de la dynamique du système. En effet, des problèmes s'étendant de l'économie jusqu'à l'aérospatiale en passant par le contrôle quantique peuvent être formulés de cette manière. La théorie du contrôle optimal est une discipline transverse applicable à de nombreux domaines.

Du point de vue de la terminologie, il est important également de définir les trois grands types de problèmes que l'on peut rencontrer. Le premier est celui défini par le système (2.5) qui est un problème de type Mayer-Lagrange. Un second problème que l'on traitera est le problème de type Lagrange. Dans celui-ci, l'objectif final n'est pas de minimiser un coût mais d'aller exactement sur une cible donnée tout en minimisant un coût dépendant du chemin emprunté. Le problème est alors le suivant :

$$\begin{cases} C(x, u) &= \int_0^{t_f} \mathrm{d}t f^0(x(t), u(t)) \\ \dot{x} &= f(x(t), u(t)) \\ x(0) &= x_0 \\ x(t_f) &= x_f \end{cases} . \tag{2.7}$$

La dernière classe est formée par les problèmes de type Mayer. Ces problèmes ne cherchent pas à minimiser un coût dépendant du chemin mais seulement à minimiser un coût terminal, la cible à l'instant final n'est alors pas définie.

$$\begin{cases} C(x, u) &= g(x(t_f)) \\ \dot{x} &= f(x(t), u(t)) \\ x(0) &= x_0 \end{cases} . \tag{2.8}$$

2.4 Contrôle géométrique

2.4.1 Introduction au Principe du maximum de Pontryagin

Le principe du maximum de Pontryagin (PMP) est une reformulation du problème de contrôle optimal sous forme hamiltonienne [1, 2, 3]. Pour introduire le PMP, on choisit de traiter le problème de contrôle optimal le plus général possible, c'est-à-dire sous la forme d'un problème de type Mayer-Lagrange :

$$\begin{cases} C &= g(x(t_f)) + \lambda \displaystyle\int_0^{t_f} f^0(t, x(t), u(t)) \\ \dot{x} &= f(t, x(t), u(t)) \\ x(0) &= x_0 \end{cases}, \tag{2.9}$$

où t_f la durée du contrôle, peut être fixée ou non. Le PMP stipule que le pseudo-Hamiltonien peut être défini comme suit :

$$H = pf + p^0 f^0, \tag{2.10}$$

avec $(p(t), p^0)$ l'état adjoint du système[3], différent du vecteur nul, f la dynamique de l'état du système et f^0 le coût sur le chemin. Si $x \in \mathbb{R}^n$, alors $p \in \mathbb{R}^n$ tandis que p^0 est un scalaire négatif ou nul car on considère un principe du maximum et non du minimum. On doit alors minimiser l'effet du coût f^0. Si $p^0 \neq 0$, on dit que l'on est dans le cas normal (anormal si $p^0 = 0$). On peut alors normaliser p^0 par $-\dfrac{1}{2}$ (en général pour le cas des problèmes en énergie minimum) ou par -1 (généralement pour les problèmes en temps minimum). Ce point sera expliqué ci-dessous.

Précisons que dans la suite de ce manuscrit la dépendance de toutes les fonctions introduites en fonction de l'état du système, de l'état adjoint et du champ de contrôle sera considérée comme implicite et ne sera précisée que lorsque que cela sera nécessaire. Le coeur du PMP est la condition de maximisation de l'Hamiltonien :

$$u = \arg\max_{v \in U} \left[H(v) \right]. \tag{2.11}$$

Cette relation signifie que le contrôle solution du problème doit maximiser la valeur de l'Hamiltonien et ce, parmi toutes les fonctions à valeurs dans le domaine U. De plus, le PMP étant une reformulation hamiltonienne du problème, la dynamique du système dans l'espace des phases (x, p) doit vérifier les équations de Hamilton. Elles s'écrivent à partir de l'Hamiltonien de manière standard :

$$\dot{x} = \frac{\partial H}{\partial p}, \quad \dot{p} = -\frac{\partial H}{\partial x}. \tag{2.12}$$

3. Il faut remarquer que si le problème est autonome c'est-à-dire qu'il ne dépend pas explicitement du temps alors H est constant.

Les trajectoires hamiltoniennes solution de ce système sont appelées extrémales et constituent des candidates pour être la trajectoire optimale du problème considéré. Notons que le couple (p, p^0) n'est défini qu'à une constante multiplicative près. Ceci signifie que si ce couple représente une extrémale alors le couple $(\alpha p, \alpha p^0)$, avec $\alpha > 0$, correspond à la même trajectoire. On peut le vérifier simplement à partir des équations de Hamilton puisque :

$$\begin{cases} \dot{x} = \dfrac{\partial \alpha H}{\partial \alpha p} = \dfrac{\partial H}{\partial p} \\ \dot{(\alpha p)} = \alpha \dot{p} = -\dfrac{\partial \alpha H}{\partial x} = -\alpha \dfrac{\partial H}{\partial x} \end{cases}, \tag{2.13}$$

avec la même solution $x(t)$ pour n'importe quelle valeur de α. Le problème défini en l'état doit vérifier la condition initiale $x(0) = x_0$ mais le PMP nous indique également que si la condition finale n'est pas fixée, *i.e.* si le problème est de type Mayer ou Mayer-Lagrange, la solution doit alors maximiser $g(x(t_f))$, ce qui induit la condition de transversalité $p(t_f) = p_0 \left.\dfrac{\partial g}{\partial x}\right|_{t_f}$. Dans un problème de type Lagrange, si le point final n'est pas fixé, on obtient $p(t_f) = 0$. Autrement dit, si le point final est libre alors le vecteur adjoint au temps final doit être nul. Le problème est alors un problème avec des conditions aux deux bords. Nous verrons plus loin dans la définition des méthodes de tir ce que cela implique. Une autre remarque importante est que si le temps final est libre, il existe une condition supplémentaire qui est $H(t_f) = 0$.

Lorsque l'ensemble des valeurs possibles de u est un ouvert, la condition de maximisation (2.11) peut se mettre sous une forme de dérivée :

$$\frac{\partial H}{\partial u} = 0, \tag{2.14}$$

cette expression est évidemment une condition au premier ordre. Nous n'introduirons pas dans ce manuscrit le concept de points conjugués qui permet de caractériser les solutions au second ordre. Ces points permettent de déterminer l'optimalité locale des trajectoires extrémales considérées. Un détail complet du calcul de la position de ces points peut être trouvé dans [6].

Dans tous les cas que nous traiterons à l'aide du contrôle géométrique dans cette thèse, la dynamique sera linéaire [4] et sans perdre de généralité pourra s'écrire :

$$\dot{x} = F + uG, \tag{2.15}$$

avec F et G deux champs de vecteurs dépendant des coordonnées x et des paramètres caractéristiques

4. Lorsque l'amplitude du contrôle est suffisamment faible, la dépendance de la dynamique vis-à-vis du contrôle peut être supposée linéaire dans l'équation de Schrödinger.

du système. Ce type de dynamique est dite affine en théorie du contrôle. Le problème de type énergie minimum est un problème où $u \in \mathbb{R}$, c'est un problème de Lagrange avec $f^0(t,x,u) = u^2$. L'Hamiltonien s'écrit $p(F+uG) - \frac{1}{2}u^2$ avec $p^0 = -\frac{1}{2}$ et la condition de maximisation devient :

$$\frac{\partial H}{\partial u} = pG - u = 0. \tag{2.16}$$

Le champ s'écrit $u = pG$ et comme on ne s'intéresse qu'au cas normal, il est alors possible de définir ce que l'on appelle l'Hamiltonien réduit $H_r = pF + \frac{1}{2}(pG)^2$ en remplaçant u par son expression dans H. L'équation $\frac{\partial H}{\partial u}$ permet de déterminer u comme une fonction de (x,p) de manière unique, on peut alors considérer les équations de Hamilton de H_r à la place de H. On trouve alors un vrai système hamiltonien indépendant de u. On a alors :

$$\left\{ \begin{array}{l} \dfrac{\partial H_r(x,p)}{\partial x} = \dfrac{\partial H(x,p,u(x,p))}{\partial x} + \dfrac{\partial H(x,p,u(x,p))}{\partial u}\dfrac{\partial u(x,p)}{\partial x} = \dfrac{\partial H(x,p,u(x,p))}{\partial x} \\ \dfrac{\partial H_r(x,p)}{\partial p} = \dfrac{\partial H(x,p,u(x,p))}{\partial p} + \dfrac{\partial H(x,p,u(x,p))}{\partial u}\dfrac{\partial u(x,p)}{\partial p} = \dfrac{\partial H(x,p,u(x,p))}{\partial p} \end{array} \right. . \tag{2.17}$$

Ensuite, supposant la condition initiale $x(0) = x_0$ et la condition finale $x(t_f) = x_f$ ou $p(t_f) = p_f$, il suffit d'utiliser une méthode de tir (voir section (2.4.3)) pour déterminer $p(0)$ tel que la trajectoire extrémale $(x(t), p(t))$ vérifie les conditions aux deux bords.

Le second cas important que nous retrouverons dans plusieurs chapitres et plusieurs situations physiques différentes est le cas où la dynamique est pilotée par un unique contrôle borné : $u \in [-m, m]$. Le domaine des valeurs possibles de u est alors un domaine fermé. La condition de maximisation (2.14) ne peut pas être utilisée. Cependant, il suffit de remarquer que puisque l'Hamiltonien est linéaire en u et que le domaine du champ est borné, on peut introduire la fonction $\Phi = pG$ et choisir $u = m \operatorname{sign} \Phi$ pour maximiser l'Hamiltonien. En effet, l'Hamiltonien réduit devient :

$$\begin{aligned} H_r &= pF + m \operatorname{sign}(pG) pG \\ &= pF + m|pG|. \end{aligned} \tag{2.18}$$

Cette fonction Φ est appelée couramment la fonction de commutation ou fonction de switch. L'origine de ce nom provient du fait qu'elle détermine le signe du contrôle et notamment détermine le moment où la valeur du champ commute de $\pm m$ à $\mp m$. Si la valeur de cette fonction s'annule à l'instant noté t_s, le contrôle change de signe, on dit qu'il commute (ou parfois, par abus de langage, qu'il "switch"). Dans le langage du contrôle optimal, on nomme une solution constituée d'un champ constant un bang et une solution constituée d'une commutation une solution bang-bang.

Il existe une dernière possibilité où cette fois la fonction de switch ne s'annule plus en un point isolé t_s mais sur un intervalle de temps $[t_1, t_2]$. Dans ce cas, le contrôle u ne peut pas être déterminé directement à partir de la fonction Φ. En revanche, on peut utiliser le fait que $\Phi(t) = \dot{\Phi}(t) = ... = 0$ sur cet intervalle. Le lieu de l'espace des phases (x, p) où ces conditions sont vérifiées est appelé le lieu singulier. Le contrôle qui permet de se déplacer sur ce lieu s'appelle le contrôle singulier [4] et doit vérifier l'annulation de Φ et de ses dérivées. Il est noté u_s. Pour trouver sa forme, il suffit en général de calculer la dérivée seconde de Φ. De manière générale, il faut calculer la dérivée $2n$-ième jusqu'à trouver une fonction qui dépende de u. Dans le cas le plus simple, les calculs des dérivées nous conduisent à :

$$\begin{cases} \Phi &= pG \\ \dot{\Phi} &= p\,[F, G] \\ \ddot{\Phi} &= p\,[F, [F, G]] + u_s p\,[G, [F, G]] \end{cases}, \tag{2.19}$$

avec $[A, B]$ correspondant aux crochets de Lie des champs de vecteurs A et B. Ces crochets sont définis comme $[A, B] = \nabla_x B.A - \nabla_x A.B$ et $(\nabla_x B)_{ij} = \dfrac{\partial A_i}{\partial x_j}$. Les calculs de dérivées utilisent aussi le fait que : $\dot{A} = \nabla_x A\dot{x}$ où A est un vecteur. Ceci est vrai si A est autonome. Le contrôle singulier est alors donné par l'expression :

$$u_s = -\frac{p\,[F, [F, G]]}{p\,[G, [F, G]]}. \tag{2.20}$$

Pour résumer, suivant la valeur de la fonction de commutation le contrôle prend la forme :

$$\begin{cases} u = m \operatorname{sign} \Phi \\ \text{ si } \Phi = 0\, \dot{\Phi} \neq 0 \,:\, u = \pm m \to \mp m \\ \Phi = \dot{\Phi} = ... = 0 \,:\, u = u_s \end{cases} \tag{2.21}$$

Dans la suite du manuscrit, nous traiterons plusieurs problèmes qui seront des cas particuliers de ce problème à deux dimensions. On définit différents objets géométriques utiles au traitement de ces problèmes dans la section suivante.

2.4.2 Contrôle en temps optimal d'un système sur $\mathbb{R}^2$

Dans cette section, on considère que le modèle est linéaire par rapport au contrôle suivant la dynamique (2.15). Les outils géométriques de cette partie sont également valables si l'interaction avec le contrôle n'est pas linéaire. La dimension du système est supposée égale à deux. On note alors $F = (F_1, F_2)$ et $G = (G_1, G_2)$ les composantes des champs de vecteurs. En considérant une borne sur le contrôle, l'analyse du problème se simplifie. Il est possible de la faire pour partie dans l'espace des

coordonnées (x) au lieu de l'espace des phases complet (x, p). En réalité, il apparaîtra dans la section (3.3) que pour pouvoir mener une étude complète, il est nécessaire de continuer de travailler dans l'espace des phases. Cela vient de la restriction de l'étude à l'espace (x) dans lequel une projection $(x, p) \to (x)$ est effectuée, ce qui engendre une perte d'informations utiles à l'analyse.

Dans cette situation, on définit deux lieux importants. Le premier est nommé lieu de colinéarité, il correspond simplement au lieu de l'espace physique (x) où les champs de vecteurs F et G sont colinéaires. Ce lieu se calcule à l'aide du déterminant suivant :

$$\det\left(F(x), G(x)\right) = 0. \tag{2.22}$$

La dynamique du système étant de la forme $\dot{x} = F + uG$, les points fixes de la dynamique sont définis par $\dot{x}$=0. Cela revient à chercher le lieu où $F \pm mG = 0$, c'est-à-dire l'ensemble où F et G sont colinéaires. Le lieu de colinéarité correspond donc à l'ensemble des points fixes de la dynamique tel que $m \in \mathbb{R}$.

Le deuxième lieu d'intérêt est le lieu dit singulier. Il est défini par $\Phi(x, p) = \dot{\Phi}(x, p) = 0$. Cela veut dire que l'on doit vérifier simultanément $pG = p\left[F, G\right] = 0$. Le problème étant à deux dimensions, si p est orthogonal au champ de vecteur F, alors il est également orthogonal au champ de vecteur $[F, G]$ et comme $p^0 \neq 0$, p est non nul. Le lieu singulier est alors défini par :

$$\det\left(G(x), \left[F, G\right](x)\right) = 0. \tag{2.23}$$

Il faut remarquer bien évidemment que le fait que le système soit situé sur ce lieu singulier ne constitue pas en soit un critère suffisant pour dire que le système est sur le lieu singulier de l'espace des phases complet vérifiant $\Phi(x, p) = \dot{\Phi}(x, p)$. En effet le lieu singulier défini par (2.23) correspond à la projection du lieu singulier de l'espace des phases (x, p) sur l'espace physique (x). Ce point sera explicité dans la section (3.3).

L'équation (2.23) permet de définir le lieu singulier dans l'espace (x). Cette contrainte permet de dire qu'il est de dimension 1. Dans ce cas particulier, le contrôle singulier a également l'avantage de se simplifier et ne dépend plus que des variables physiques (x). Le contrôle singulier n'existe que sur le lieu singulier. Il paraît naturel alors qu'il ne dépende plus de la variable adjointe car le fait de se déplacer physiquement sur une ligne spécifique de l'espace (x) signifie que le déplacement le long de cette ligne ne peut pas dépendre de p. Le champ singulier est alors fonction de la position et est noté $u_s(x)$. On dit alors que le contrôle est feedback. On peut le vérifier en calculant u_s directement à partir

de la dérivée temporelle de (2.23). De cette façon, on obtient :

$$u_s = -\frac{\left(\frac{\partial \det(G,[F,G])}{\partial x_1}, \frac{\partial \det(G,[F,G])}{\partial x_2}\right).F}{\left(\frac{\partial \det(G,[F,G])}{\partial x_1}, \frac{\partial \det(G,[F,G])}{\partial x_2}\right).G}. \tag{2.24}$$

Le problème à deux dimensions traité en temps minimum présente également l'avantage d'autoriser l'accès à la synthèse optimale. Elle correspond à la carte représentant l'ensemble des trajectoires permettant de minimiser le temps pour se déplacer à l'intérieur de l'ensemble accessible. La construction de la synthèse se fait à l'aide des objets géométriques définis précèdement et des arguments de continuité, lesquels permettent d'accéder à l'optimalité globale des solutions. On pourra se référer au livre [5] pour plus détails. Des exemples en RMN seront traités dans le chapitre 3 ainsi que dans le chapitre 5.

Optimalité des trajectoires régulières et singulières

A deux dimensions, l'optimalité locale et éventuellement l'optimalité globale des trajectoires régulières et singulières peuvent être déterminées à l'aide de la forme horloge [19]. Cette fonction permet de mesurer le temps pour parcourir une trajectoire entre deux points x_0 et x_1 indépendamment de la forme du champ de contrôle. Cette objet est une 1-forme qui vérifie pour un champ vectoriel X sur $\mathbb{R}^2$ de la forme $X = \sum_i x_i \frac{\partial}{\partial x_i}$:

$$\omega(X) = \sum_i \omega_i \mathrm{d}x_i(X) = \sum_i \omega_i x_i, \tag{2.25}$$

car $\mathrm{d}x_i(X) = \mathrm{d}x_i\left(x_i \frac{\partial}{\partial x_i}\right) = x_i$. Par définition, en géométrie différentielle, on a $\mathrm{d}x_i\left(\frac{\partial}{\partial x_j}\right) = \delta_{i,j}$ [5] avec $\delta_{i,j}$ le delta de Kronecker. La forme horloge est définie par $\omega(F) = 1$ et $\omega(G) = 0$. En développant ces deux conditions, on trouve :

$$\begin{cases} \omega(F) &= F_1\omega_1 + F_2\omega_2 = 1 \\ \omega(G) &= G_1\omega_1 + G_2\omega_2 = 0 \end{cases}, \tag{2.26}$$

et en cherchant ω_1 et ω_2 solutions de ce système d'équations, on obtient :

$$\begin{cases} \omega_1 &= -\frac{G_2}{\det(F,G)} \\ \omega_2 &= \frac{G_1}{\det(F,G)} \end{cases}. \tag{2.27}$$

5. Ceci constitue l'analogue du produit standard usuel en respectant le produit ligne par colonne.

La forme horloge n'est donc pas définie sur le lieu de colinéarité défini par $\det(F, G)$. A présent, regardons comment utiliser cette fonction pour mesurer le temps d'une trajectoire γ. γ est définie par la donnée $x(t)$ avec $t \in [0, t_f]$. On suppose que cette solution ne traverse pas le lieu de colinéarité. On a :

$$\int_\gamma \omega = \int_0^T \mathrm{d}t\,[\omega(\dot{x})] = \int_0^T \mathrm{d}t\,[\omega(F)] + \int_0^T \mathrm{d}t\,[u\omega(G)] = T \tag{2.28}$$

Le nom de la forme horloge est donc justifié puisqu'elle mesure le temps de parcours le long de γ. L'objectif de cette section est de déterminer l'optimalité des trajectoires singulières. On calcule pour cela la dérivée extérieure de la 1-forme. Le résultat est une 2-forme qui s'écrit :

$$\mathrm{d}\omega = \frac{\partial \omega_2}{\partial x_1}\mathrm{d}x_1 \wedge \mathrm{d}x_2 + \frac{\partial \omega_1}{\partial x_2}\mathrm{d}x_2 \wedge \mathrm{d}x_1. \tag{2.29}$$

En développant cette équation on obtient :

$$\mathrm{d}\omega = \frac{\det\left(G, [F, G]\right)}{\det\left(F, G\right)^2}\mathrm{d}x_1 \wedge \mathrm{d}x_2. \tag{2.30}$$

Pour vérifier si un chemin γ_1 est plus rapide qu'un chemin γ_2, on définit l'intégrale sur le contour fermé constitué de γ_1 et $-\gamma_2$:

$$\oint \omega = \int_{\gamma_1} \omega - \int_{\gamma_2} \omega = T_1 - T_2. \tag{2.31}$$

Ensuite à l'aide du théorème de Stokes, on trouve :

$$\begin{aligned}\oint \omega &= \int_\Sigma \mathrm{d}\omega = \int_\Sigma -\frac{f}{\det\left(F, G\right)}\mathrm{d}x_1\mathrm{d}x_2 \\ &= \int_\Sigma \mathrm{d}\omega = \int_\Sigma \frac{\det\left(G, [F, G]\right)}{\det\left(F, G\right)^2}\mathrm{d}x_1\mathrm{d}x_2 = T_1 - T_2,\end{aligned} \tag{2.32}$$

où Σ est la surface délimitée par les chemins γ_1 et γ_2. On remarque que le signe du numérateur change en traversant les lignes singulières définies par l'équation (2.23). Suivant le signe de cette fonction définissant le lieu singulier, on peut déterminer si la trajectoire singulière est optimale ou non [6] comme sur le schéma (2.1). Sur cette figure, deux parcours différents sont comparés. Le premier est constitué d'une trajectoire régulière bang-bang suivie d'une singulière et le second d'une trajectoire singulière suivie d'une régulière bang-bang. Il faut noter que ces deux chemins sont orientés par rapport au sens

6. On peut aussi connaître l'optimalité de trajectoires régulières à condition qu'elles ne traversent pas le lieu de colinéarité.

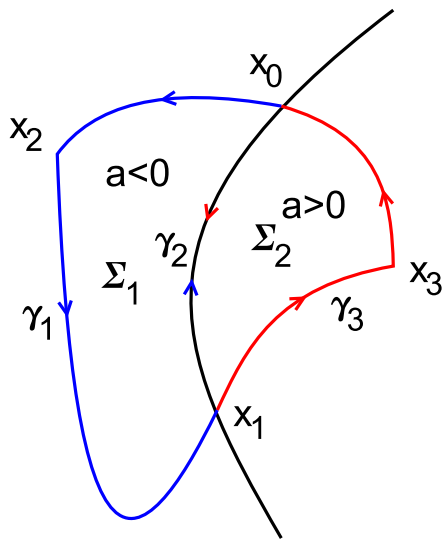


Fig. 2.1: Schéma d'optimalité de la singulière. En noir la ligne singulière, en rouge et en bleu deux trajectoires bang-bang de signe opposé. Les points x_0 et x_1 sont les points initial et final des trajectoires γ_2 et γ_3 tandis que les points x_2 et x_3 sont les points de commutations. On note $a = \det(G, [F, G])$.

trigonométrique. Sur cette figure, on peut calculer les quantités suivantes :

$$\oint \omega = \int_{\gamma_1} \omega - \int_{\gamma_2} \omega = T_1 - T_2 < 0 \tag{2.33}$$

$$\oint \omega = \int_{\gamma_2} \omega - \int_{\gamma_3} \omega = T_2 - T_3 > 0 \tag{2.34}$$

On voit que pour cet exemple la singulière n'est pas optimale car $T_2 > T_1$ et $T_2 > T_3$.

La forme horloge permet donc de comparer deux chemins différents et permet également de prédire localement l'optimalité des singulières. Il faut cependant faire attention car une singulière peut être localement optimale sans être globalement optimale. Nous reviendrons sur ce point dans le chapitre (3) traitant des problèmes en RMN et également dans le chapitre (5).

2.4.3 Méthode de tir

Le nom de méthode de tir provient du fait que la fonction de tir, dont on cherche les zéros, effectue une propagation de l'état initial du système. Il s'agit de l'analogue d'une flèche en mouvement. Puis en analysant la dérivée de la fonction de tir, la méthode de résolution va effectuer un nouvel essai pour se rapprocher de la cible comme si l'on tirait une seconde flèche au tir à l'arc pour ajuster la précision du tir précèdent et se rapprocher du centre de la cible.

L'idée du tir [20] est de trouver une condition initiale telle que l'extrémale vérifie une condition finale. Pour simplifier, imaginons que la dynamique du système soit connue et ait pour point initial

$(x(0), p(0))$. Partant du point $x(0) = x_0$ on cherche à arriver à l'instant t_f (fixé ou non, s'il est libre, il constitue une des variables de tir) sur la cible x_f. On définit alors ce que l'on appelle la fonction de tir telle que :

$$S(p(0)) = x(t_f) - x_f. \tag{2.35}$$

Une méthode de tir est une méthode qui combine un intégrateur numérique pour propager une condition initiale (qui peut être inconnue ou non) à l'aide de la dynamique du système et une méthode de type Newton (ou autre) afin de rechercher le zéro d'une fonction. Il suffit de donner un point initial suffisamment proche de la solution pour initialiser l'algorithme et alors en analysant numériquement la dérivée de la fonction de tir par rapport à ces variables, celle-ci va déterminer les valeurs de $p(0)$ telles que S soit nul dans notre exemple. Dans toute la suite du manuscrit, dès que l'on parlera de tir, cela supposera que le code COTCOT [6] a été utilisé afin d'en déduire les solutions.

Brièvement, COTCOT est une interface Fortran-Matlab développé par J.B. Caillau de l'université de Bourgogne. A l'aide du logiciel de différentiation automatique TAPENADE et ayant écrit l'Hamiltonien de Pontryagin du système dans un fichier Fortran, un script dans COTCOT va alors générer différents fichiers dérivés à l'aide de TAPENADE et du fichier contenant l'Hamiltonien. Parmi ces fichiers, certains permettent de retrouver les équations de Hamilton et d'autres les équations d'évolution des champs de Jacobi (des champs de vecteurs nécessaires au calcul des points conjugués). Ensuite, le script va générer les fichiers mexfiles qui constituent les interfaces Fortran-Matlab. COTCOT contient un intégrateur numérique qui est une méthode de type Runge-Kutta-Fehlberg d'ordre 4(5) et également une méthode de résolution de système d'équations de type hybride Powel. Pour finir, il suffit d'écrire dans Matlab la fonction de tir (qui contient un appel à l'intégrateur) et d'appeler la méthode de résolution de système d'équations pour trouver une solution annulant la fonction de tir. Ce code a donc l'avantage de combiner la rapidité d'exécution de fortran avec la modularité de Matlab qui ne requiert pas de compilation, un gain de temps étant ainsi obtenu dans le traitement du problème. Ce type de méthode permet d'atteindre des précisions de l'ordre de 1×10^{-12}. Elles sont donc très précises mais en revanche la difficulté à initialiser le tir augmente à mesure que la taille du système augmente. C'est le désavantage majeur que l'on peut reprocher à ces méthodes. Pour des dimensions petites, en revanche, elles permettent d'obtenir d'excellents résultats.

Le principe de la méthode de tir est totalement différent du principe de base des méthodes numériques itératives de construction du contrôle optimal tel que GRAPE ou des algorithmes monotones qui seront présentés dans les sections (2.5.2) et (2.5.1). Les systèmes quantiques décrivant les molécules ou les atomes sont souvent de dimension infinie (ici on ne fait pas référence à un continuum mais un ensemble infini d'états liés) et dans la pratique la taille de l'espace de Hilbert est tronquée

à une valeur limite de dimension finie. Le nombre de niveaux et la dimension correspondante restent en général tout de même trop grands pour envisager l'utilisation d'une méthode de tir décrite précédemment. Dans ce cas, la résolution du problème se résume à rechercher la condition initiale sur l'état adjoint. Lorsque la dimension du problème est trop grande, il faut privilégier une méthode où la fonction $u(t)$ solution du problème est recherchée directement.

2.4.4 Méthode d'homotopie

L'homotopie correspond à la notion de déformation continue d'un objet à un autre. Dans notre cas, cela signifie que si le problème dépend d'un paramètre α, on pourra trouver un ensemble de solutions dépendant continûment de ce paramètre. L'idée est alors d'utiliser une méthode de tir pour trouver une solution pour une valeur initiale $\alpha = \alpha_0$. Puis, en modifiant continûment la valeur de α, on pourra trouver la solution du problème pour une valeur de α différente. Pour illustrer ces propos, commençons par décrire le cas de la méthode d'homotopie discrète. La résolution se fait en variant α de manière progressive, de sorte qu'il est alors aisé d'effectuer un tir pour le nouveau paramètre α avec la solution correspondant à la valeur précédente du paramètre. Le code Hampath, également développé par J.B. Caillau, permet de réaliser à la fois des continuations discrètes mais également continues, tout en reprenant l'ensemble des fonctionnalités de COTCOT. L'homotopie continue utilise les dérivées par rapport au paramètre pour modifier sa valeur. Une méthode de prédiction correction peut être utilisée pour se déplacer le long du chemin défini par l'intervalle de variation du paramètre d'homotopie.

L'autre possibilité est d'utiliser une méthode de suivi de chemin. Pour cela, il faut définir le chemin $c(s) = (z(s), \alpha(s))$ avec $z = (x, p)$ et s un paramètre permettant de décrire le chemin à suivre. On peut alors écrire l'équation d'évolution de $c(s)$: $\dot{c}(s) = \nabla_c S(c(s))$ avec $S(c)$ la fonction de tir utilisée. Elle doit donc vérifier $S(c(s)) = 0$ le long du chemin s. La condition initiale $z(0)$ est déterminée par une méthode de tir et par définition $\alpha(0) = 0$. On a alors la condition initiale : $c(0) = (z(0), \alpha(0) = 0)$. A l'aide d'un intégrateur numérique performant, il suffit d'intégrer cette équation différentielle jusqu'à ce que $\alpha = 1$. Cette méthode est efficace mais le calcul de $\nabla_c(S(c(s))$ devient très vite difficile et c'est là que le code Hampath intervient. Il suffit de lui fournir l'Hamiltonien de Pontryagin ainsi que la fonction de tir utilisée et à l'aide de TAPENADE, il génère tous les fichiers nécessaires pour faire l'intégration depuis MATLAB. Notons que dans la communauté du contrôle quantique, une autre méthode continue d'homotopie a été développée, il s'agit de l'algorithme D-morph [21, 22] développé par Rabitz et ses collaborateurs.

2.5 Méthodes numériques

Nous allons présenter deux méthodes numériques itératives permettant de déterminer une solution d'un problème de contrôle optimal : les algorithmes monotones et une méthode de type gradient, GRAPE (GRadient Ascent Pulse Engineering). Ces deux approches résolvent des problèmes de type Lagrange ou Mayer-Lagrange mais dans tous les cas, le problème est formulé sous la forme d'un problème de type Mayer ou Mayer-Lagrange. Ceci signifie que si par exemple la cible finale est définie, alors le problème est de type Lagrange mais on cherchera plutôt à minimiser la distance entre le point à l'instant final et cette cible. Le problème devient alors un problème de Mayer

2.5.1 Algorithme monotone

Dans cette section, nous décrivons la méthode numérique nommée algorithme monotone. Ce type d'algorithme désigne tous les types d'algorithmes itératifs auto-convergents. Nous reviendrons plus loin sur cette notion lorsque nous comparerons les méthodes de type gradient et de type monotone. Elle est fortement utilisée dans le domaine du contrôle quantique. Pour cette raison, nous l'introduirons en utilisant le formalisme et les notations propres à la mécanique quantique. Une présentation recouvrant en partie l'ensemble de ces différents algorithmes peut être trouvée dans [23], ainsi qu'une introduction didactique dans [24]. Avant de décrire la méthode, il est important de rappeler la définition d'un problème de contrôle optimal dans le cas quantique. Supposons que la température du système soit nulle. Dans ce cas, l'état du système est décrit par un état pur et la dynamique du système est gouvernée par l'équation de Schrödinger :

$$\mathrm{i}\,\frac{\partial}{\partial t}|\psi(t)\rangle = H(t)|\psi(t)\rangle, \tag{2.36}$$

avec $H(t) = H_0 + u(t)H_1$, $u(t)$ étant le paramètre de contrôle et H_0 et H_1 deux opérateurs hermitiens agissant dans l'espace de Hilbert supposé de dimension finie. Notons que le système d'unité atomique est utilisé de sorte que la constante $\hbar = 1$u.a. (unité atomique) et donc n'apparaît plus dans l'équation de Schrödinger. L'état initial du système est noté $|\psi(0)\rangle = |\psi_0\rangle$. L'objectif est d'atteindre un état cible $|\psi_c\rangle$. On cherche alors à maximiser le coût terminal suivant :

$$g(t_f) = |\,\langle\psi(t_f|\psi_c\rangle\,|^2, \tag{2.37}$$

Cette quantité correspond au carré du module du produit scalaire hermitien de $|\psi_c\rangle$ et $|\psi(t_f)\rangle$. Dans cette approche, on peut aussi chercher à maximiser la valeur moyenne d'une observable à l'instant

final, on note alors $\langle A \rangle = \langle \psi(t_f) | A | \psi(t_f) \rangle$. On retrouve le cas précèdent en choisissant A comme étant un projecteur sur l'état cible : $A = |\psi_c\rangle\langle\psi_c|$. La contrainte suivante doit être prise en compte[7] :

$$C(u) = \int_0^{t_f} \mathrm{d}t\, u(t)^2. \tag{2.38}$$

Cela définit un problème de contrôle optimal de type Mayer-Lagrange, qui se résume sous la forme :

$$\begin{cases} \max[g(t_f) - \lambda C(u)] \\ \mathrm{i}\,\dfrac{\partial}{\partial t}|\psi(t)\rangle = H(t)|\psi(t)\rangle \\ |\psi(0)\rangle = |\psi_0\rangle \end{cases} . \tag{2.39}$$

Le paramètre λ est un paramètre réel positif arbitraire qui sert à ajuster le poids relatif entre la contrainte terminale et la contrainte dépendant du chemin. En pratique ,en modifiant sa valeur, la vitesse de convergence de l'algorithme et la précision avec laquelle la cible sera approchée seront modifiées. Lorsque le paramètre λ est petit, la précision de l'algorithme est privilégiée et des intensités importantes de champ de contrôle peuvent être obtenues car l'énergie est peu pénalisée. Dans la situation inverse où λ est grand, on cherchera une solution avec une énergie moindre mais dont l'efficacité finale sera également plus faible. Il faut remarquer que l'on peut choisir ce paramètre constant mais également dépendant du temps. Par exemple, en choisissant $\lambda(t) = \dfrac{\lambda_0}{\sin^2(\pi t/t_f)}$, on imposera au champ d'être nul aux temps $t = 0$ et $t = t_f$. Ceci peut aider à obtenir des champs de contrôle plus réalistes expérimentalement dans le cadre d'un contrôle par champ laser.

Dans le PMP, on définit un Hamiltonien incluant la dynamique et la contrainte. De manière équivalente, on peut définir une action $\mathcal{L}$ basée sur un lagrangien. Pour définir ce lagrangien, on introduit le multiplicateur de Lagrange $|\chi(t)\rangle$ qui joue un rôle analogue à l'état adjoint introduit par le PMP[8]. On note alors :

$$\mathcal{L} = g(t_f) + \int_0^{t_f} \mathrm{d}t \left[2\,\mathrm{Im}\left(\langle\chi(t)|\, H(t) - \mathrm{i}\,\frac{\partial}{\partial t}\,|\psi(t)\rangle \right) - \lambda u(t)^2 \right]. \tag{2.40}$$

La partie intégrale contenant la dynamique est précédée de $2\,\mathrm{Im}()$, *i.e.* la partie imaginaire d'un nombre complexe, afin d'imposer que l'état $|\psi(t)\rangle$ et son état adjoint $\langle\psi(t)|$ respectent l'équation de Schrödinger. La première étape de la résolution de ce problème consiste à chercher les trajectoires

7. Ces algorithmes ne fonctionnent pas pour n'importe quelle forme de coût. L'énergie ou une généralisation avec un intégrant de la forme u^{2n} avec $n \geq 1$ entier [25] doit être utilisée pour assurer la monotonie.

8. On adopte ici une formulation lagrangienne. La raison est simplement de suivre les notations et le point de vue utilisé dans la littérature. Cependant il faut remarquer que l'on aurait pu faire le même travail en partant du principe du maximum, c'est le point de qui sera adopté lorsque nous détaillerons l'algorithme GRAPE dans la section 2.5.2

extrémales de cette action. Pour cela, on calcule les variations de $\mathcal{L}$ par rapport à $u(t)$, $|\psi(t)\rangle$ et $|\chi(t)\rangle$. On cherche alors des trajectoires qui vérifient :

$$\begin{cases} \dfrac{\delta\mathcal{L}}{\delta|\psi\rangle} &= \dfrac{\delta\mathcal{L}}{\delta\langle\psi|} = 0 \\ \dfrac{\delta\mathcal{L}}{\delta|\chi\rangle} &= \dfrac{\delta\mathcal{L}}{\delta\langle\chi|} = 0 \\ \dfrac{\delta\mathcal{L}}{\delta u} &= 0 \end{cases} . \tag{2.41}$$

En effectuant ces calculs, on aboutit aux trois équations suivantes :

$$\begin{cases} u(t) &= -\dfrac{1}{\lambda}\,\mathrm{Im}(\langle\chi(t)|\,H_1\,|\psi(t)\rangle) \\ \mathrm{i}\,\dfrac{\partial}{\partial t}|\psi(t)\rangle &= H(t)|\psi(t)\rangle \\ \mathrm{i}\,\dfrac{\partial}{\partial t}|\chi(t)\rangle &= H(t)|\chi(t)\rangle \end{cases} \tag{2.42}$$

et on trouve aussi les conditions aux bords :

$$\begin{cases} |\psi(0)\rangle &= |\psi_0\rangle \\ |\chi(T)\rangle &= |\psi_c\rangle \end{cases} \tag{2.43}$$

La première équation correspond à la condition de maximisation du PMP dans le cadre de l'optimisation de l'énergie du contrôle : $\dfrac{\partial\mathcal{H}}{\partial u}$. Les deux équations suivantes signifient que l'état $|\psi(t)\rangle$ et $|\chi(t)\rangle$ satisfont l'équation de Schrödinger. Grossièrement ces équations sont l'analogue des équations de Hamilton obtenues par le PMP. Les conditions aux bords obtenues correspondent aux conditions de transversalité données par le PMP. Un type d'algorithme très utilisé pour déterminer une solution aux équations variationnelles précédentes est du type monotone et introduit initialement par Krotov. Il a ensuite été adapté à la mécanique quantique par Tannor [9] mais également par Rabitz et ses collaborateurs dans le même temps [26]. La version couramment utilisé correspond à l'algorithme introduit dans la fin des années 90 par Rabitz [27, 28].

Un algorithme monotone est une méthode itérative pour déterminer la forme du champ vérifiant les conditions du problème. La propriété principale qui permet de construire un algorithme est la monotonie de l'évolution du coût au cours des itérations. On introduit l'indice k pour étiqueter celle-ci et le coût à chaque itération. La différence de coût se note alors :

$$\begin{aligned} \Delta J_{k+1} &= J_{k+1} - J_k \\ &= |\,\langle\psi_{k+1}(t_f)|\psi_c\rangle\,|^2 - |\,\langle\psi_k(t_f)|\psi_c\rangle\,|^2 + \int_0^{t_f} dt\lambda\left(u_{k+1}^2 - u_k^2\right). \end{aligned}$$

La quantité $|\langle\psi_k(t_f)|\psi_c\rangle|^2$ peut être décomposée de la façon suivante à l'aide de k' l'indice de l'itération associé à l'état adjoint :

$$\begin{aligned}
|\langle\psi_k(t_f)|\psi_c\rangle|^2 &= |\langle\psi_k(0)|\chi_{k'}(0)\rangle|^2 + \int_0^{t_f}\mathrm{d}t\frac{\partial}{\partial t}|\langle\psi_k(t)|\chi_{k'}(t)\rangle|^2 \\
&= \int_0^{t_f}\mathrm{d}t\left[2\,\mathrm{Im}(\langle\psi_k(t)|\chi_{k'}(t)\rangle\langle\chi_{k'}(t)|\,H(u_k)-H(\tilde{u}_{k'})\,|\psi_k(t)\rangle)\right] \\
&= \int_0^{t_f}\mathrm{d}t\left[A_{k,k'}(u_k-u_{k'})\right],
\end{aligned}$$

avec $A_{k,k'} = 2\,\mathrm{Im}(\langle\psi_k(t)|\chi_{k'}(t)\rangle\langle\chi_{k'}(t)|\,H_1\,|\psi_k(t)\rangle)$ et $\tilde{u}_k$ le champ de contrôle utilisé pour piloter l'état adjoint. En développant la différence de coût on trouve alors :

$$\begin{aligned}
\Delta J_{k+1} &= \int_0^{t_f}\mathrm{d}t\left((u_{k+1}-\tilde{u}_k)A_{k+1,k}-(u_k-\tilde{u}_k)A_{k,k}-\lambda(u_{k+1}^2-u_k^2+\tilde{u}_k-\tilde{u}_k)\right) \\
&= \int_0^{t_f}\mathrm{d}t\left([u_{k+1}-\tilde{u}_k][A_{k+1,k}-\lambda(u_{k+1}+\tilde{u}_k)]+[u_k-\tilde{u}_k][A_{k,k}-\lambda(u_k+\tilde{u}_k)]\right) \\
&= \int_0^{t_f}\mathrm{d}t(P_1+P_2)
\end{aligned}$$

Afin que la propriété de monotonie soit respectée, une condition suffisante consiste à vérifier que les quantités P_1 et P_2 soient positives à chaque instant [9]. Pour ce faire, il suffit d'introduire les deux constantes η_1 et η_2 positives comme suit :

$$\begin{cases} u_{k+1}-\tilde{u}_k &= \eta_1[A_{k+1,k}-\lambda(u_{k+1}+\tilde{u}_k)] \\ u_k-\tilde{u}_k &= \eta_2[A_{k,k}-\lambda(u_k+\tilde{u}_k)] \end{cases}.$$

Il est alors possible de factoriser ces expressions afin de déterminer les contrôles :

$$\begin{cases} u_{k+1} &= \dfrac{1-\lambda\eta_1}{1+\lambda\eta_1}\tilde{u}_k+\dfrac{\eta_1}{1+\lambda\eta_1}A_{k+1,k} \\ \tilde{u}_k &= \dfrac{1-\lambda\eta_2}{1+\lambda\eta_2}u_k+\dfrac{\eta_2}{1+\lambda\eta_2}A_{k,k} \end{cases}.$$

Ces équations sont équivalentes à celles de l'algorithme présenté dans [30] qui réunit les formules de Rabitz et de Tannor en une unique formule. Il faut remarquer que si l'on choisis la valeur $\lambda = 0$, on se retrouve avec un problème non contraint. De plus cela signifie que l'algorithme converge vers $\dfrac{\delta\mathcal{L}}{\delta u} = 0 = \mathrm{Im}(\langle\chi|H_1\rangle\,\psi)$, ce qui est équivalent à dire que la fonction de switch est nulle au cours du temps et donc que l'algorithme converge vers une solution appartenant au lieu singulier. Numériquement, l'algorithme doit être initialisé par un champ d'essai u_0. L'algorithme à proprement parler est le suivant :

9. Il faut remarquer que cela revient à faire du contrôle local dans l'espace des phases à chaque itération. Un parallèle plus détaillé est étudié dans l'article [29]

1. k=0
   initialisation de u_0
2. Propagation$(|\psi_0\rangle, u_0, t_0, t_f)$
3. Propagation$(|\chi_0\rangle, \tilde{u}_0, t_f, t_0)$ et calcul simultané de $\tilde{u}_0 = g(|\psi_0\rangle, |\chi_0\rangle)$
4. mise à jour de k : $k \leftarrow k+1$
5. Propagation$(|\psi_k\rangle, u_k, t_0, t_f)$ et calcul simultané de $u_k = f(|\psi_k\rangle, |\chi_{k-1}\rangle)$
6. Propagation$(|\chi_k\rangle, \tilde{u}_k, t_f, t_0)$ et calcul simultané de $\tilde{u}_k = g(|\psi_k\rangle, |\chi_k\rangle)$
7. si $J_k - J_{k-1} \leq \epsilon$ alors arrêt de l'algorithme
   sinon étape 4

On note Propagation$(|\psi\rangle, u, t_1, t_2)$ l'action de propager l'état $|\psi\rangle$ à l'aide du champ u du temps t_1 à t_2. L'algorithme débute par la propagation de $|\psi_0\rangle$ à l'aide du champ d'essai u_0. Ensuite, connaissant $|\psi_0(t)\rangle$, $|\chi_0(t_f)\rangle = |\psi_c\rangle$ est propagé en arrière en calculant simultanément le champ $\tilde{u}_0$. Ensuite, on procède de la même manière pour $|\psi_1(t)\rangle$ mais avec une propagation en avant. Ce processus itératif est répété jusqu'à ce qu'un critère de convergence soit satisfait.

Dans ce domaine, il faut noter qu'un nombre impressionnant d'algorithmes a été publié. Ces algorithmes permettent de déterminer un champ générant une transformation unitaire donnée [31], de prendre en compte des contraintes spectrales [32, 33], ou de traiter la non-linéarité entre le système et le contrôle [25, 34]. Une version adaptée au contrôle de système dont la dynamique est non-linéaire par rapport à l'état existe également [35]. Certains de ces développements seront présentés dans le chapitre 4.

2.5.2 Algorithme GRAPE

Dans cette section, l'algorithme GRAPE est détaillé brièvement. Cet acronyme signifie GRadient Ascent Pulse Engineering. Il convient de préciser qu'en réalité sous le nom GRAPE deux algorithmes distincts ont été développés. Les deux versions sont basées sur une méthode de type gradient, c'est-à-dire qu'elles utilisent le gradient d'une fonctionnelle pour actualiser la forme du champ à chaque itération afin de converger vers une extrémale.

Dans la première version de GRAPE [36], l'intervalle de temps $[0, t_f]$ est tout d'abord décomposé en N temps notés t_i tels que : $t_1 = 0 < t_2 < \ldots < t_N = t_f$. On note u_i la valeur à l'instant t_i. Cette discrétisation transforme le problème de contrôle optimal en un problème d'optimisation à N

dimensions. Plus précisément, on écrit le coût final en fonction du propagateur du système :

$$\begin{aligned} |\langle\psi_c|\psi(t_f)\rangle|^2 &= \langle\psi_0| U_0^\dagger ... U_N^\dagger |\psi_c\rangle \langle\psi_c| U_N ... U_0 |\psi_0\rangle \\ &= \langle\psi_i| U_i^\dagger |\chi_i\rangle \langle\chi_i| U_i |\psi_i\rangle \\ &= |\langle\psi_i|\chi_i\rangle|^2, \end{aligned} \tag{2.44}$$

où $|\chi_i\rangle$ est défini par $|\psi_c\rangle = U_N U_{N-1} \dots U_{i+1}|\chi_i\rangle$. On suppose que l'Hamiltonien du système se met sous la forme $H_0 + u(t)H_1$ et en faisant l'approximation du split-operateur [37], le propagateur s'écrit : $U_i = \exp(-\mathrm{i}\, H_0/2) \exp(-u_i \,\mathrm{i}\, H_1) \exp(-\mathrm{i}\, H_0/2)$. Cette approximation a la propriété d'être unitaire et d'induire seulement une erreur proportionnelle à Δt^3. On calcule alors la dérivée du coût par rapport à u_i :

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}u_i}|\langle\psi_c|\psi(T)\rangle|^2 = 2\,\mathrm{Im}\Big(\mathrm{i}\,\langle\psi_i|\chi_{i-1}\rangle \langle\chi_i| \exp(-\mathrm{i}\, H_0/2)\, H_1 \exp(-u_i\,\mathrm{i}\, H_1) \exp(-\mathrm{i}\, H_0/2)\, |\psi_i\rangle\Big) \tag{2.45}$$

L'algorithme itératif se construit alors de la manière suivante. Supposons donné le champ de contrôle u_k à l'itération k de l'algorithme, on note u_i^k ses valeurs discrétisées. On calcule alors la nouvelle valeur du champ à l'ordre $k+1$ au temps i par la formule :

$$u_i^{k+1} = u_i^k + \alpha \frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}u_i}|\langle\psi_c|\psi_k(T)\rangle|^2. \tag{2.46}$$

Le paramètre α est choisi suffisamment petit pour que le coût s'accroisse [10]. Il suffit alors de choisir la meilleure valeur de α pour accélérer la convergence de l'algorithme. Différentes variantes peuvent être développées et diffèrerons dans la méthode de line-search choisie. Les méthodes dites de line-search dans le contexte des méthodes de gradient, désignent la façon de déterminer la meilleure valeur de α pour accélérer la convergence. Ces méthodes peuvent être du type gradients conjugués ou BFGS. Des versions au second ordre permettent d'utiliser la hessienne afin d'avoir une méthode de line-search plus efficace et surtout plus précise [38]. Notons que cette approche résout des problèmes de contrôle optimal de type Mayer-Lagrange.

La seconde version de GRAPE est basée sur le PMP [39]. Elle consiste à dériver le pseudo-Hamiltonien H_p par rapport à u_i et utilise cette dérivée pour mettre à jour à chaque itération le champ afin de converger vers la cible et vers la condition de maximisation $\dfrac{\partial H_p}{\partial u_i} = 0$. On définit alors

10. L'espace dans lequel notre fonction est maximisée est $\mathbb{R}^N$ avec N le nombre de champs de contrôle. Ce type de méthode est qualifiée de direct car elle ne s'appuie pas sur un principe d'optimisation tel que le PMP.

l'Hamiltonien suivant pour un problème de type Mayer :

$$H_p = \mathrm{Im}(\langle\chi| H(t) |\psi\rangle)\,, \tag{2.47}$$

où l'on introduit l'état adjoint χ. On peut vérifier que cela correspond bien à l'Hamiltonien de Pontryagin. Pour cela, on note $\dot{X} = F(X,u)$ l'équation de Schrödinger sous forme complexe (la forme standard) et $\dot{x} = f(x,u)$ l'équation de Schrödinger écrite sous forme réelle, c'est-à-dire que l'on a $X \in \mathbb{C}^n$ et $x \in \mathbb{R}^{2n}$. Il faut alors vérifier que $H_p(x,p) \equiv H_p(X,P)$. On écrit $|\psi\rangle = |\psi_r\rangle + \mathrm{i}\,|\psi_i\rangle$ avec r et i dénotant la partie réelle et imaginaire. Faisant de même pour $|\chi\rangle$ et pour l'Hamiltonien quantique, à partir de l'Hamiltonien de Pontryagin ; on trouve :

$$H_p = \langle\chi_r| H_r |\psi_i\rangle + \langle\chi_r| H_r |\psi_i\rangle - \langle\chi_i| H_r |\psi_r\rangle + \langle\chi_i| H_i |\psi_i\rangle \tag{2.48}$$

Il faut vérifier maintenant qu'en décomposant la dynamique en partie réelle et imaginaire et ensuite en appliquant le PMP sur ce système, on trouve bien la même chose. En utilisant la même décomposition que précédemment on trouve la dynamique :

$$\begin{pmatrix} \dot{\psi}_r \\ \dot{\psi}_i \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} H_i & H_r \\ -H_r & H_i \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \psi_r \\ \psi_i \end{pmatrix}. \tag{2.49}$$

En appliquant le PMP à l'aide de cette équation, on peut vérifier que l'Hamiltonien de Pontryagin est le même.

On peut à l'aide des équations de Hamilton retrouver sa dynamique. Celles-ci conduisent au fait que l'état adjoint $|\chi(t)\rangle$ voit sa dynamique gouvernée elle aussi par l'équation de Schrödinger. Les conditions de transversalité permettent de connaitre la valeur finale de l'état adjoint. Ensuite la condition de maximisation est utilisée pour déterminer le gradient qui servira à mettre à jour le contrôle. L'algorithme se formule alors de la façon suivante :

1. initialisation de u_0
2. Propagation$(|\psi_0\rangle, u_0, t_0, t_f)$ et Propagation$(|\chi_0\rangle, u_0, t_f, t_0)$
3. détermination de α
4. mise à jour de $u_0 = f(|\psi_0\rangle, |\chi_0\rangle)$
5. mise à jour de k : $k \leftarrow k+1$
6. Propagation$(|\psi_k\rangle, u_k, t_0, t_f)$ et Propagation$(|\chi_k\rangle, u_k, t_f, t_0)$
7. détermination de α

8. mise à jour de $u_k = f(|\psi_k\rangle, |\chi_k\rangle)$
9. si $J_k - J_{k-1} \leq \epsilon$ alors arrêt de l'algorithme
   sinon étape 5

Ayant initialisé l'algorithme par un champ d'essai, l'état adjoint et l'état du système sont propagés respectivement en arrière et en avant. Le premier à partir de la cible $|\psi_c\rangle$ et le second à partir de l'état initial $|\psi_0\rangle$. Connaissant ces évolutions, le champ est mis à jour comme précédemment. Ensuite, la méthode de line-search permet de rechercher la valeur optimale de α. On recalcule à chaque étape les propagations avant et arrière de l'état du système $|\psi(t)\rangle$ et de l'état adjoint $|\chi(t)\rangle$ avec le nouveau contrôle. L'algorithme s'arrête quand un critère de convergence est respecté. Par exemple si $|J_{k+1} - J_k| \leq \epsilon$ avec $\epsilon > 0$ un seuil donné.

2.6 Comparaison des algorithmes de type monotones et de type gradient

La différence entre ces deux algorithmes peut se résumer en deux points. L'algorithme monotone est par définition auto-convergent, *i.e.* il n'y a pas de méthode de line-search pour accélérer ou assurer la convergence. On peut toutefois modifier à chaque itération la valeur du paramètre λ pour accélérer la convergence mais cela nécessite des évaluations du coût, ce qui alourdit l'algorithme car l'évaluation du coût nécessite de nouvelles propagations. La seconde différence tient dans l'agencement des propagations. L'algorithme monotone est dit séquentiel, c'est-à-dire qu'il faut effectuer la propagation arrière de l'état $|\chi(t)\rangle$ puis à l'aide de celle-ci faire la propagation de l'état $|\psi(t)\rangle$. Ces deux propagations ne sont donc pas indépendantes. Le calcul n'est pas parallélisable. Les algorithmes de type GRAPE ont un caractère simultané dans le sens où le nouveau champ de contrôle est utilisé pour calculer les propagations avant et arrière qui permettent ensuite de mettre à jour de champ de contrôle. Dans les méthodes de types GRAPE, la convergence est assurée par la méthode de line-search. Celle-ci nécessite l'évaluation du coût du problème et donc de nombreuses propagations supplémentaires sont nécessaires. Ce calcul est parallélisable. D'un point de vue de la convergence ces deux méthodes ont un comportement assez similaire. Une étude comparative est menée dans [40].

2.7 Différence qualitative entre le tir et les méthodes itératives

Brièvement pour comprendre la différence entre la méthode de tir et une méthode de contrôle itérative, il faut se reporter à la figure (2.2). A gauche, on peut voir le schéma représentant le processus

de tir. On recherche alors la valeur initiale de $p(0)$ tel que partant de $x(0) = x_0$ l'extrémale vérifie $x(t_f) = x_f$. La dynamique de (x, p) est régie par les équations de Hamilton découlant du PMP et la recherche est donc effectuée au sein de l'ensemble des trajectoires extrémales.

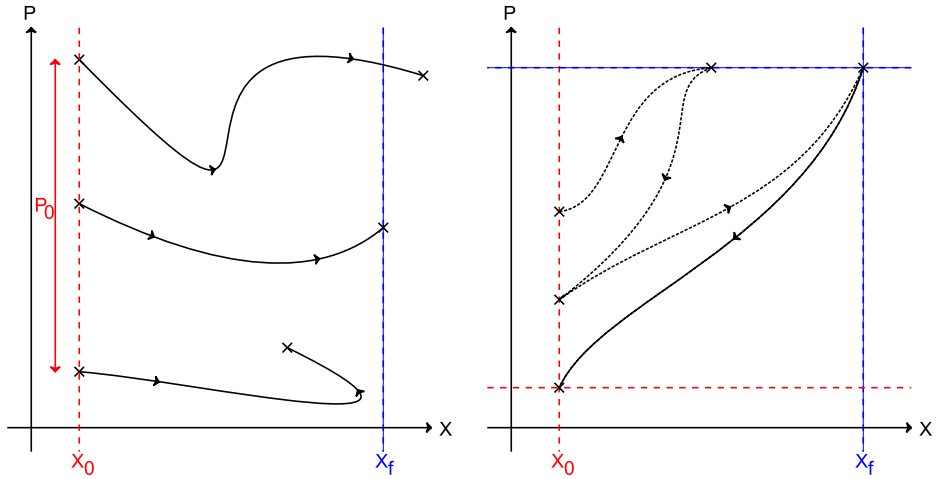


Fig. 2.2: (Gauche) Schéma du processus de tir, la recherche d'une solution vérifiant les conditions aux bords se fait dans l'ensemble des solutions extrémales. (Droite) Schéma d'un algorithme itératif, l'algorithme converge itérativement vers une extrémale qui vérifie les condition aux bords.

Sur la partie droite de la figure, le schéma correspondant au fonctionnement d'un algorithme de contrôle itératif dans l'espace des phases est représenté. Les conditions aux bords connues sont $x(0) = x_0$ et $p(t_f) = x_f$. L'objectif est de vérifier à l'instant final la condition $x(t_f) = x_f$, dans le cas où l'équation de Schrödinger est considérée, c'est-à-dire en l'absence de dissipation, l'état adjoint vérifie également l'équation de Schrödinger et vérifie donc $p(t_f) = x_f$, il doit également vérifier $x(0) = x_0$. Initialisant l'algorithme avec un champ quelconque, la trajectoire dans l'espace des phases connecte les lignes $x(0) = x_0$ et $p(t_f) = x_f$, ensuite en faisant des propagations avant et arrière du système en recalculant un champ de contrôle, l'algorithme converge vers une solution extrémale permettant de connecter les points $(x(0), p(0)) = (x_0, x_0)$ et $(x(t_f), p(t_f)) = (x_f, x_f)$.

La différence de comportement dans l'espace des phases est clair. La méthode de tir consiste à trouver le bon point de départ tandis que l'algorithme itératif permet de se balader dans l'espace des phases en se rapprochant d'une solution extrémale vérifiant les conditions aux bords. La méthode de tir est une reformulation du problème de contrôle optimal qui transforme la recherche d'une fonction continue $u(t)$ en la recherche d'un vecteur de dimension finie, le vecteur $p(0)$ tandis que l'algorithme itératif lui va rechercher une fonction $u(t)$ telle que la trajectoire dans l'espace des phases soit extrémale.

Chapitre 3

Contrôle optimal en Résonance Magnétique Nucléaire

3.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous présenterons une application du contrôle optimal à la dynamique des spins en Résonance Magnétique Nucléaire (RMN) et en Imagerie par Résonance Magnétique nucléaire (IRM). Nous utiliserons à la fois les techniques du contrôle optimal géométrique pour les systèmes de plus petites dimensions et des algorithmes numériques type GRAPE pour les systèmes plus complexes. La plupart des champs de contrôle optimaux calculés ont été implémentés expérimentalement dans le groupe de S.J. Glaser en Allemagne à Munich. Ce chapitre est organisé comme suit : après une brève section rappelant les principes de bases de la RMN et de l'IRM ainsi que les différents modèles utilisés, nous étudierons deux mécanismes de bases, *i.e.* la saturation d'un spin 1/2 et l'optimisation du contraste des images produites par IRM. Nous considérerons dans ce chapitre uniquement des expériences en phase liquide.

3.2 Dynamique des spins en résonance magnétique nucléaire

3.2.1 Construction du Modèle

L'objectif de cette section est de rappeler les bases théoriques liées au concept de spin ainsi que le principe de base d'une expérience de Résonance Magnétique Nucléaire (RMN). Ces rappels permettront ensuite de traiter le contrôle optimal de tels systèmes. Il est important de rappeler qu'expérimentalement le spin a été mis en évidence en 1922 grâce à la célèbre expérience de Stern et Gerlach. Celle-ci consiste à envoyer des atomes d'argent dans un champ magnétique intense. L'effet observé est une séparation du faisceau atomique en deux. L'interprétation de ce phénomène a été introduite quelques années plus tard par Paul Dirac. Il explique les résultats de cette expérience en introduisant une nouvelle propriété de la matière, le spin. Le mot propriété n'est pas utilisé ici de manière anodine. En effet, le concept de spin introduit de nouvelles propriétés intrinsèques au système

considéré qui n'ont pas d'équivalent classique. On peut tout de même imaginer le spin comme un moment angulaire correspondant à la rotation du système sur lui-même mais ceci reste une image, par conséquent, il est plus prudent de considérer le spin comme une propriété intrinsèque de la particule considérée. Les propriétés de l'opérateur de spin $\overrightarrow{S} = (S_x, S_y, S_z)$ sont les mêmes que celles du moment angulaire. Il vérifie :

$$\begin{cases} S^2|s,m\rangle & = s(s+1)|s,m\rangle \\ S_z|s,m\rangle & = m|s,m\rangle \end{cases}, \tag{3.1}$$

avec $-s \leq m \leq s$ et s la valeur du spin du système considéré. $\{|s,m\rangle\}$ constitue la base propre commune des opérateurs S^2 et S_z. Une différence notable entre la propriété de spin et le moment angulaire tient au fait que la valeur de s n'est pas nécessairement entière, elle peut être demi-entière.

Dans l'expérience de Stern et Gerlach, les atomes utilisés possèdent un spin demi-entier avec deux niveaux dégénérés. Le champ magnétique appliqué va séparer ces deux niveaux par effet Zeeman. L'interaction du spin avec le champ magnétique $\overrightarrow{B}$ s'écrit sous la forme : $H = -\gamma \overrightarrow{S}.\overrightarrow{B}$ où γ est le facteur gyromagnétique. Alors, en notant $B_0 \overrightarrow{u}_z$ le champ statique responsable de l'effet Zeeman, l'Hamiltonien devient : $H = -\gamma B_0 S_z$ avec $S_z = \frac{1}{2}\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}$. Les niveaux d'énergie sont alors donnés par $E_\pm = \pm\frac{1}{2}\gamma B_0$.

La mesure de l'état du spin de la particule ne peut donner que deux valeurs $s = \pm 1/2$ et ce quelque soit l'axe de mesure choisi. On note ces deux états $|\pm\rangle$.

L'observable utilisée en RMN est le moment magnétique noté $\overrightarrow{M}$. Celui-ci correspond à la moyenne quantique du moment angulaire du spin $\overrightarrow{S}$ multipliée par le facteur gyromagnétique :

$$\begin{aligned} \overrightarrow{M} &= \gamma \langle\psi| \overrightarrow{S} |\psi\rangle \\ &= \gamma \langle\psi| S_x\overrightarrow{u_x} + S_y\overrightarrow{u_y} + S_z\overrightarrow{u_z} |\psi\rangle \\ &= M_x\overrightarrow{u_x} + M_y\overrightarrow{u_y} + M_z\overrightarrow{u_z}, \end{aligned} \tag{3.2}$$

où $|\psi\rangle$ est l'état du système. Dans le cas d'un mélange statistique, il faut utiliser le formalisme de la matrice densité. L'état du système s'écrit alors : $\rho = \sum_k p_k\rho_k$ avec $\rho_k = |\psi_k\rangle\langle\psi_k|$ et $\sum_k p_k^2 = 1$. Le moment magnétique va alors s'exprimer comme : $M_i = \gamma\,\mathrm{tr}(\rho S_i) = \gamma \sum_k p_k\,\mathrm{tr}(\rho_k M_i) = \sum_k p_k M_i^k$. Dans le cas où l'état du système est un mélange statistique, le moment magnétique résultant correspond alors à la somme des moments angulaires associés aux états d'énergie du système pondérés par leurs poids statistiques respectifs. Il faut remarquer que le moment magnétique est une grandeur microscopique tandis que le processus de mesure lui permet de remonter à une grandeur macroscopique : le courant

circulant dans les bobines de mesures (voir section (3.2.6)). Ce courant est induit par l'ensemble des moments magnétiques de l'échantillon dont la résultante est une aimantation macroscopique que l'on notera pour simplifier $\overrightarrow{m}$.

Pour pouvoir contrôler la dynamique de cette aimantation, il est nécessaire de connaitre la dynamique qui décrit l'évolution du moment magnétique. Prenons comme point de départ l'équation de Schrödinger (on considère le cas pur) :

$$\mathrm{i}\,\frac{\partial}{\partial t}|\psi(t)\rangle = H(t)|\psi(t)\rangle = (H_0 + u(t)H_1)\,|\psi(t)\rangle. \tag{3.3}$$

On peut alors calculer l'expression de la dérivée temporelle du moment magnétique :

$$\begin{aligned}\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\langle\psi(t)|\,S_i\,|\psi(t)\rangle &= \left(\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\langle\psi(t)|\right)S_i|\psi(t)\rangle + \langle\psi(t)|S_i\left(\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}|\psi(t)\rangle\right)\\ &= \mathrm{i}\langle\psi(t)|H(t)S_i|\psi(t)\rangle - \mathrm{i}\langle\psi(t)|S_iH(t)|\psi(t)\rangle\\ &= \mathrm{i}\langle\psi(t)|\,[H(t),S_i]\,|\psi(t)\rangle\end{aligned} \tag{3.4}$$

Dans le cadre d'un système possédant un spin 1/2, les opérateurs S_i sont décrits par les matrices de Pauli qui s'écrivent :

$$S_x = \frac{1}{2}\begin{pmatrix}0 & 1\\ 1 & 0\end{pmatrix},\quad S_y = \frac{1}{2}\begin{pmatrix}0 & -\mathrm{i}\\ \mathrm{i} & 0\end{pmatrix}\quad\text{et}\quad S_z = \frac{1}{2}\begin{pmatrix}1 & 0\\ 0 & -1\end{pmatrix}. \tag{3.5}$$

Supposons le champ magnétique statique dirigé selon z et les champs de contrôle selon x et y. On a alors : $\overrightarrow{B} = B_x\overrightarrow{u_x} + B_y\overrightarrow{u_y} + B_0\overrightarrow{u_z}$. On peut calculer le commutateur de H avec S_i :

$$[H,S_i] = -\gamma B_z\,[S_z,S_i] - \gamma B_x\,[S_x,S_i] - \gamma B_y\,[S_y,S_i]\,. \tag{3.6}$$

On trouve alors :

$$\begin{cases}[H,S_x] &= \mathrm{i}\,\gamma B_yS_z - \mathrm{i}\,\gamma B_zS_y\\ [H,S_y] &= -\,\mathrm{i}\,\gamma B_xS_z + \mathrm{i}\,\gamma B_zS_x\\ [H,S_z] &= -\,\mathrm{i}\,\gamma B_xS_y + \mathrm{i}\,\gamma B_yS_x\end{cases}. \tag{3.7}$$

A l'aide de cette dernière équation on obtient l'équation de Bloch :

$$\begin{cases}\dot{M}_x &= \gamma B_zM_y - \gamma B_yM_z\\ \dot{M}_y &= -\gamma B_zM_x + \gamma B_xM_z\\ \dot{M}_z &= -\gamma B_yM_x + \gamma B_xM_y\end{cases}, \tag{3.8}$$

ou sous une forme plus compacte :

$$\dot{\overrightarrow{M}} = \gamma \overrightarrow{M} \times \overrightarrow{B}(t), \tag{3.9}$$

qui exprime le couple créé par le champ magnétique $\overrightarrow{B}$ sur l'aimantation $\overrightarrow{M}$. Le champ magnétique n'induit que des rotations, son action est donc unitaire. En l'absence de dissipation, le moment magnétique évolue alors sur une sphère. En RMN, le champ magnétique prend la forme générale suivante :

$$\overrightarrow{B}(t) = B_x(t)\cos(\omega t)\overrightarrow{u_x} + B_y(t)\cos(\omega t + \varphi)\overrightarrow{u_y} + B_0\overrightarrow{u_z}, \tag{3.10}$$

où ω est la fréquence de la porteuse du champ. Typiquement, cette fréquence est de l'ordre de la dizaine à la centaine de mégahertz. Il faut remarquer que si B_x et B_y sont constant et que la phase relative est de $\pi/2$ alors on obtient un champ de contrôle polarisé circulairement. Chaque composante du champ $\overrightarrow{B}$ est induit par une bobine parcourue par un courant. Le spin, en présence du champ B_0 seul, va tourner à la fréquence $\omega_0 = E_+ - E- = \gamma B_0$ autour de l'axe z. On dit que ω est quasi-résonant avec ω_0 si $\dfrac{\omega - \omega_0}{\omega} \ll 1$. Pour simplifier l'expression de l'équation de Bloch en présence de ce champ, on peut effectuer un changement de référentiel pour passer du repère fixe au repère tournant (figure(3.1)). On définit alors la matrice de passage suivante :

$$T = \begin{pmatrix} \cos(\omega t) & -\sin(\omega t) & 0 \\ \sin(\omega t) & \cos(\omega t) & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}. \tag{3.11}$$

On écrit l'équation de Bloch sous forme matricielle comme $\dot{M}_f = AM_f$ avec l'indice f correspondant au repère fixe du laboratoire. Pour passer dans le repère tournant indicé par t, il faut effectuer l'opération suivante $M_t = TM_f$. On trouve alors :

$$\begin{aligned} \dot{M}_t &= (T\dot{M}_f) \\ &= \dot{T}M_f + T\dot{M}_f \\ &= \dot{T}T^{-1}(TM_f) + TAT^{-1}(TM_f) \\ &= \dot{T}T^{-1}M_t + TAT^{-1}M_t \\ &= CM_t. \end{aligned} \tag{3.12}$$

La matrice C peut s'écrire sous la forme suivante :

$$C = \dot{T}T^{-1} + TAT^{-1} = \begin{pmatrix} 0 & -\Delta\omega & a \\ \Delta\omega & 0 & b \\ -a & -b & 0 \end{pmatrix}, \tag{3.13}$$

avec :

$$\begin{cases} a &= -B_x \cos(\omega t)\sin(\omega t) + B_y \cos(\omega t)\cos(\omega t + \varphi) \\ b &= B_x \cos^2(\omega t) + B_y \sin(\omega t)\cos(\omega t + \varphi) \end{cases} \quad \text{et} \quad \Delta\omega = \omega - \omega_0. \tag{3.14}$$

Si la condition de quasi-résonance est vérifiée, cela signifie que l'effet de la porteuse des champs magnétiques sera en moyenne nul sur un intervalle de temps grand devant $\frac{2\pi}{\omega}$. Les expressions de a et b se simplifient alors :

$$\begin{cases} a &= \frac{B_y}{2}\cos\varphi \\ b &= \frac{B_x}{2} - \frac{B_y}{2}\sin\varphi \end{cases} . \tag{3.15}$$

On constate que les amplitudes des champs sont divisées par deux. On peut le comprendre en constatant qu'un champ oscillant selon une direction fixe peut être décomposé en un champ tournant vers la droite et un autre tournant vers la gauche. Si on se place dans le référentiel tournant de l'un des deux champs alors, en moyenne, l'effet du second sera nul dans ce référentiel. C'est la célèbre approximation des ondes tournantes (ou rotating wave approximation RWA). Dans la suite du manuscrit, on considèrera que la phase relative entre $\overrightarrow{B_x}(t)$ et $\overrightarrow{B_y}(t)$ est nulle. On introduit également les paramètres : $\Delta\omega = \omega - \gamma B_0$ et $\overrightarrow{\omega}_1 = -\gamma\overrightarrow{B}_1$ où $\omega_1 = (\omega_x, \omega_y)$. Dans la suite le contrôle correspondra au vecteur ω_1

Donnons une description plus qualitative de la dynamique afin d'avoir une vision plus intuitive de l'interaction des différents champs magnétiques avec le moment magnétique. Tout d'abord il faut comprendre l'effet du champ statique sur le moment magnétique. Imaginons que l'on perturbe le moment magnétique de sorte que celui-ci ne soit plus à l'équilibre, alors le moment va se mettre à tourner à la fréquence $\omega_0 = \gamma B_0$. C'est ce qui est représenté sur la figure (3.1) à gauche. Passons dans le repère tournant et supposons l'amplitude du champ de contrôle B_1 constante. Dans ce cas, l'aimantation va percevoir un champ magnétique avec une composante selon z d'amplitude

$$B_z = \frac{\omega - \omega_0}{\gamma} = \frac{\Delta\omega}{\gamma}, \tag{3.16}$$

où B_1 est la composante selon x dans le référentiel tournant. L'aimantation va ainsi tourner autour du champ effectif. La figure (3.1) de droite représente la dynamique dans le repère tournant.

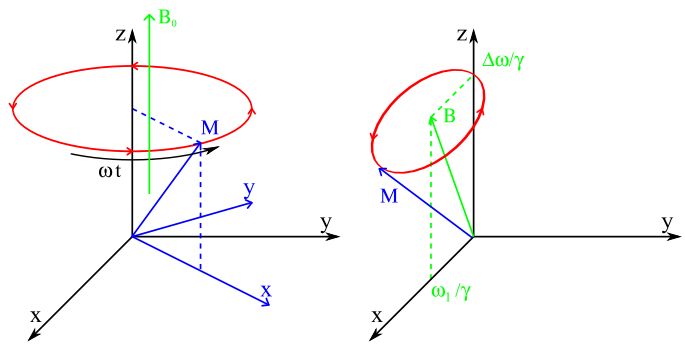


Fig. 3.1: (Gauche) Représentation schématique de l'interaction de l'aimantation avec le champ B_0. En noir, on a le repère du laboratoire et en bleu le repère tournant associé au champ de contrôle. (Droite) Comportement de l'aimantation vu depuis le repère tournant, l'aimantation précesse autour du champ effectif (en supposant l'amplitude de B_1 constante) .

3.2.2 Effet de la température

A une température T non nulle, le système doit être décrit par le formalisme de la matrice densité car le système n'est plus dans un état pur. Le mélange statistique satisfait la loi de Boltzmann :

$$\rho = \begin{cases} i = j;\ \rho_{i,i} = \dfrac{1}{Z}\exp\left[\dfrac{-\hbar E_i(E_i+1)}{k_B T}\right] \\ i \neq j;\ \rho_{i,j} = 0 \end{cases}, \quad Z = \sum_i \exp\left[\frac{-\hbar E_i(E_i+1)}{k_B T}\right], \tag{3.17}$$

avec k_B la constante de Boltzmann et $i = \pm$ correspondant à l'étiquette des niveaux.

L'aimantation induite par le champ statique sur l'échantillon peut être calculée en utilisant une distribution de Boltzmann décrivant l'état initial du système. On a alors :

$$\rho_0 = \frac{1}{Z}\begin{pmatrix} \exp\left[-\dfrac{E_-}{k_B T}\right] & 0 \\ 0 & \exp\left[-\dfrac{E_+}{k_B T}\right] \end{pmatrix}, \text{avec } Z = \exp\left[-\frac{E_-}{k_B T}\right] + \exp\left[-\frac{E_+}{k_B T}\right]. \tag{3.18}$$

E_- et E_+ sont les valeurs des deux niveaux d'énergie. Elles sont égales à $E_\pm = \pm\dfrac{\hbar\gamma B_0}{2}$. Les composantes du moment magnétique de l'échantillon selon x et y sont nulles, on trouve alors selon z :

$$\begin{aligned} M_z &= \gamma\,\mathrm{tr}(\rho_0 S_z) \\ &= \frac{\hbar\gamma}{2}\tanh\left(-\frac{\hbar\gamma B_0}{2k_B T}\right). \end{aligned} \tag{3.19}$$

L'aimantation étant définie comme une densité volumique de moment magnétique, on a :

$$m_z = \frac{n}{V} M_z, \tag{3.20}$$

avec n le nombre de particules de spin non nul dans le volume V. Dans la suite du manuscrit, par abus de langage, nous confondrons l'aimantation et le moment magnétique, les deux étant des quantités microscopiques.

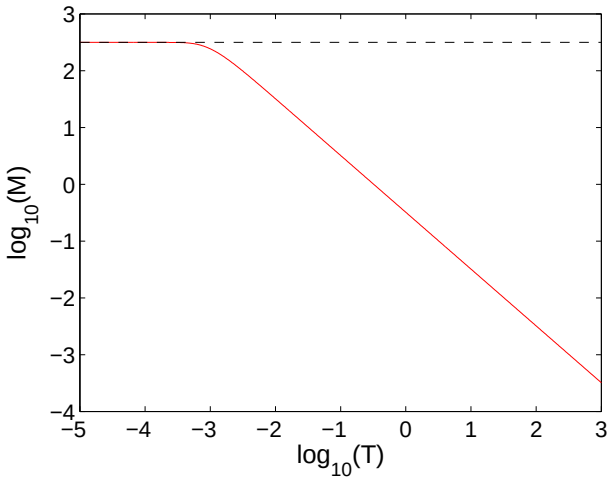


Fig. 3.2: Évolution de l'aimantation en fonction de la température de l'échantillon.

Considérons un échantillon de 1cm^3 d'eau $^1\mathrm{H}_2^{16}\mathrm{O}$ soumis à un champ magnétique de 1T et à une température de $T = 300$K. Sachant que le facteur gyromagnétique de l'hydrogène est de $267.513 \times 10^6 \mathrm{s}^{-1}.\mathrm{T}^{-1}$ et que le spin nucléaire de l'oxygène 16 est nul (c'est-à-dire que seul l'hydrogène va avoir un moment magnétique), la valeur de l'aimantation sera alors de l'ordre de $m_0 = 1 \times 10^{-3}\mathrm{A.m}^{-1}$. A partir de la figure (3.2), on constate que plus la température est élevée moins l'aimantation induite dans l'échantillon est grande, tandis que vers la limite basse, il existe une valeur critique telle que $m_z(T = 0\mathrm{K}) = \dfrac{\hbar\gamma n}{V} = 315\mathrm{A.m}^{-1}$.

Expérimentalement, il peut donc être utile d'abaisser la température pour accroître l'aimantation et ainsi augmenter le rapport signal sur bruit, mais ceci est évidemment impossible dans le cadre d'un usage médical car la baisse de température doit être de plusieurs ordres de grandeur pour avoir un effet significatif. Une autre solution consiste à augmenter l'intensité du champ B_0 mais cette technique a également ses limites. Le champ B_0 le plus intense utilisé en IRM est de l'ordre de la dizaine de teslas [1]. Expérimentalement une manière simple de palier au fait que l'aimantation mesurée soit faible est de considérer un grand nombre d'expérience afin d'augmenter artificiellement le rapport signal sur bruit. Il faut noter que le gain n'est pas linéaire. Ainsi en faisant N expériences, le rapport signal sur

1. Par exemple la plateforme expérimentale du CEA NEUROSPIN accueille un appareil d'IRM avec un champ statique de plus de 17 teslas pour faire de l'imagerie sur de petit animaux et accueillera un appareil pour des essais cliniques de plus de 11 teslas d'ici 2012. Par comparaison, en RMN les champs sont plus forts. Par exemple, en 2010 un laboratoire de Lyon à accueilli le premier spectromètre à 1GHz, ce qui correspond à champ magnétique réel de $B_0 = \dfrac{\omega_0}{\gamma_H}$ où γ_H est le facteur gyromagnétique du spin du noyau de l'hydrogène. Cela correspond à un champ magnétique d'environ 24 teslas.

bruit augmente comme $\sqrt{N}$.

Jusqu'à présent, l'équation de Bloch décrite était conservative. Cependant, pour décrire une expérience de RMN, il est nécessaire de considérer une version non-conservative. Son expression est la suivante :

$$\begin{cases} \dot{M}_x &= -\dfrac{1}{T_2}M_x - \Delta\omega M_y + \omega_y(t)M_z \\ \dot{M}_y &= -\dfrac{1}{T_2}M_y + \Delta\omega M_x - \omega_x(t)M_z \\ \dot{M}_z &= \dfrac{1}{T_1}(M_0 - M_z) - \omega_y(t)M_x + \omega_x(t)M_y \end{cases}, \tag{3.21}$$

avec M_0 l'état d'équilibre thermodynamique du système selon l'axe z et T_1 et T_2 les paramètres de dissipation longitudinal et transverse. Le paramètre T_2 peut être vu comme une perte de synchronisation locale des différents moments magnétiques nucléaires due à une interaction avec l'environnement. Le paramètre T_1 peut être considéré comme un terme d'interaction avec l'environnement forçant un retour à l'équilibre du système. Il faut remarquer que l'équation de Bloch dissipative est de type Lindblad, c'est-à-dire qu'il n'y a pas d'effet de mémoire de l'environnement et le couplage avec celui-ci est faible. Nous sommes donc dans l'approximation de Born-Markov.

3.2.3 Principe de la RMN

Le modèle physique étant établi ainsi qu'une compréhension qualitative du comportement de l'aimantation en présence de champs magnétiques, il est possible de décrire le fonctionnement d'une expérience de RMN et également celui d'une expérience d'IRM. Le principe de la spectroscopie RMN est qualitativement simple à comprendre [41, 42].

Supposons que le moment magnétique soit à l'équilibre, c'est-à-dire $\overrightarrow{M} = \overrightarrow{M_0}$. La première étape consiste à préparer l'échantillon. Pour ce faire, il suffit d'appliquer un contrôle résonant, d'amplitude constante, intense et brève afin de basculer le moment magnétique de l'équilibre vers le plan transverse. On nomme cette forme de champ d'excitation un hard-pulse de 90°. Cela signifie que l'aire de l'impulsion est égale à $\pi/2$. la dynamique induite par le hard-pulse peut se calculer directement à partir de l'équation de Bloch en négligeant la dissipation. L'excitation est résonante par rapport au noyau que l'on veut exciter (par exemple l'hydrogène ^{1}H, l'azote ^{15}N ou l'oxygène ^{17}O). La fréquence propre ω_0 va être modifiée par l'environnement de chaque noyau excité par une très petite fréquence δ. On nomme cette modification le déplacement chimique. Cela signifie que si l'on excite de manière résonante les noyaux d'hydrogène, chaque moment magnétique va tourner à une vitesse légèrement différente. De plus la valeur de δ est suffisamment petite pour que l'approximation résonante s'applique à l'ensemble des noyaux excités quelque soient leurs déplacements chimiques respectifs, cela revient à

supposer $\frac{\omega_0 + \delta}{\omega_0^1} \ll 1$. On en déduit que tous les moments magnétiques des noyaux d'hydrogène seront basculés de 90° pendant que les noyaux de nature différente ayant une fréquence propre ω_0^1 différente ne seront pas excités. Notons que δ étant petit, sa valeur est donnée en partie par millions (ppm). Ensuite, le processus de mesure se déroule sans contrôle (cette phase est nommée free-induction-decay ou FID). Lors du retour à l'équilibre des moments magnétiques, ceux-ci vont induire un flux magnétique à travers la bobine de mesure qui va à son tour induire, dans celle-ci, un courant que l'on peut mesurer.

La dynamique de l'équation de Bloch prédit que les moments magnétiques vont tourner à des fréquences différentes qui dépendent de l'environnement chimique de chaque spin. Le signal obtenu est alors un signal oscillant avec un amortissement exponentiel dont la fréquence dépend du déplacement chimique.

La spectrométrie RMN consiste ensuite à effectuer la transformée de Fourier du signal mesuré. Le spectre obtenu va alors permettre de remonter à la composition de l'échantillon à analyser ainsi qu'à la structure des molécules. L'environnement chimique de chaque spin décale la fréquence propre de rotation de chaque moment magnétique. Le spectre final est donc constitué de l'ensemble des fréquences δ centrées autour de ω_0. Les figures (3.3) illustrent ce processus dans le cas d'un seul spin, c'est-à-dire une seule fréquence.

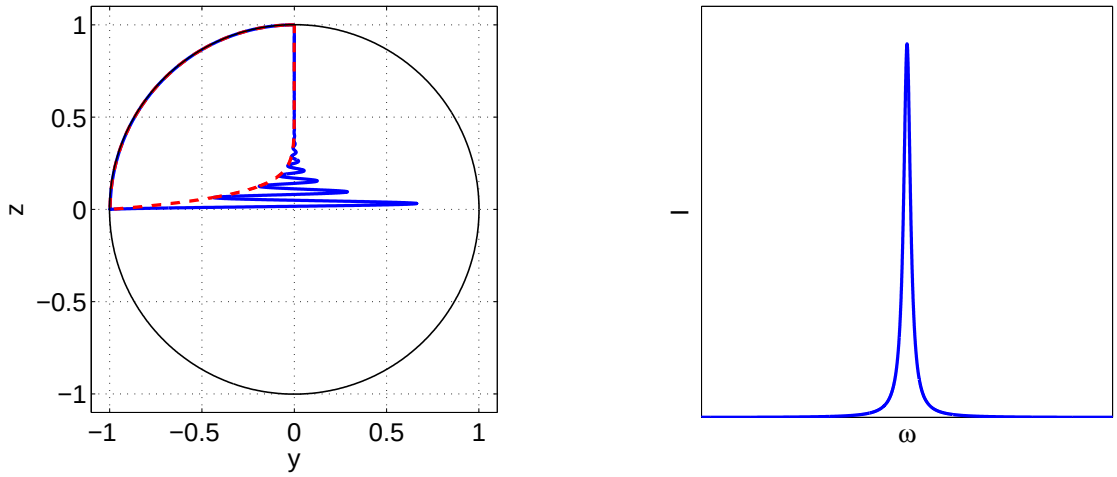


Fig. 3.3: (Gauche) Trajectoire de l'aimantation lors du retour à l'équilibre. En rouge, trajectoire dans le repère tournant et en bleu, trajectoire dans le repère fixe du laboratoire. (Droite) Illustration du spectre obtenu à partir d'une trace expérimentale simple comme sur la figure de gauche.

3.2.4 Principe de l'IRM

Tentons également de comprendre de manière simple le principe de l'Imagerie par Résonance Magnétique nucléaire[43, 44]. La différence majeure avec la spectrométrie RMN est l'ajout de trois

gradients de champ magnétique selon les trois directions x, y et z. L'action du gradient selon z est d'induire une distribution de fréquences propres ω_0 selon l'axe z. Pendant l'excitation, le gradient est allumé (et seulement pendant l'excitation). Ainsi, en choisissant une fréquence ω pour le champ radio-fréquence, on peut exciter sélectivement le plan de l'échantillon perpendiculaire à l'axe z à imager. Notons que plus le gradient sera fort et plus l'épaisseur du plan excité sera fine. L'action des deux autres gradients, selon x et y, est de coder l'information spatiale dans la distribution (x, y) afin de pouvoir par la suite reconstruire l'image.

Après avoir excité le plan z sélectivement, on applique un second gradient, par exemple selon l'axe x. Cela signifie que selon cette direction tous les moments magnétiques vont précesser à des vitesses différentes. Ainsi, en laissant ce gradient agir un temps fini, une phase dépendante de la position x va être encodée dans chaque moment magnétique. On peut alors effectuer la mesure de l'aimantation transverse. Les gradients selon x et z étant coupés, tous les moments magnétiques tournent alors à la même vitesse mais avec une phase différente dépendante de la position x. Pendant la mesure, on applique un dernier gradient selon la direction y. Il a pour effet, encore une fois, de faire précesser les moments magnétiques à des vitesses différentes et donc de coder l'information de la position des moments magnétiques selon la direction y. L'effet des deux derniers gradients est représenté schématiquement sur la figure (3.4) et l'évolution de différentes aimantations est représentée sur la figure (**??**).

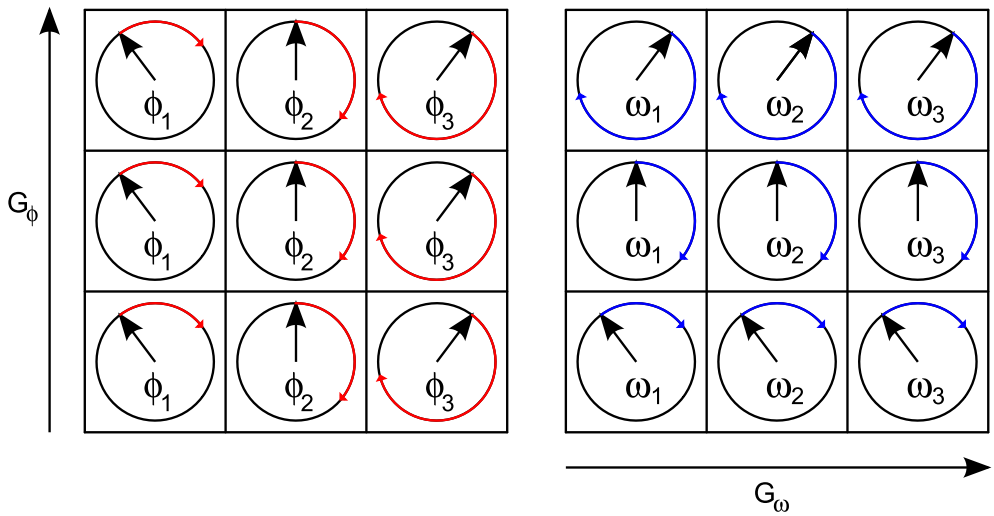


Fig. 3.4: Effet des gradients selon y et x à gauche et à droite [43]. Selon x, le gradient permet de coder une phase et selon y, il permet de différencier les moments magnétiques grâce à leurs vitesses de précessions différentes.

L'utilisation d'un appareil d'IRM ne fournit pas l'image du plan z mais plutôt la transformée de Fourier de celle-ci. La mesure, quant-à elle, nous donne une information à une dimension, c'est-à-

dire qu'en effectuant une mesure, on obtient une ligne du plan de Fourier. Pour pouvoir reconstruire le plan de Fourier complètement, il faut répéter l'opération de mesure autant de fois que nécessaire en changeant l'amplitude ou le temps d'application du gradient de phase selon x ou y. En effectuant plusieurs mesures, on peut alors reconstituer le plan de Fourier en ayant dans une direction, l'évolution de la phase, et dans la seconde direction, l'évolution de la fréquence. La dernière phase consiste à effectuer la transformée de Fourier à deux dimensions du signal, on obtient alors l'image du plan z désirée.

Ces explications constituent une base des méthodes d'imagerie par résonance magnétique. De nombreuses méthodes ont été établies afin de lutter contre les contraintes que provoquent les gradients mais également pour réduire le temps d'acquisition. En effet, le temps d'acquisition du protocole de base détaillé ci-dessus est long. Il y a autant de cycles de mesure que de lignes dans le plan de Fourier (en général 256). De plus, chaque cycle de mesure est constitué d'une phase d'excitation, d'une phase de mesure et d'une phase de relaxation où il faut attendre que l'aimantation retourne à l'équilibre. On comprend alors qu'un cycle de mesure peut être long (quelques secondes) et que pour réaliser un grand nombre de cycles, le temps d'acquisition peut devenir très long (une dizaine de minutes). En milieu clinique, un temps d'acquisition trop long aura pour conséquence une image potentiellement de mauvaise qualité car le patient n'est en général pas totalement immobile, il sera amener à bouger de quelques millimètres et ceci va bien évidemment perturber l'image finale. On en déduit l'importance des méthodes de type imagerie rapide dans ce contexte.

3.2.5 Normalisation de l'équation de Bloch

Dans le cadre du contrôle optimal, il est plus commode de manipuler des objets sans dimension. Il faut donc déterminer les dimensions physiques de l'équation de Bloch. Elles sont :

$$\begin{cases} M &= [\mathrm{A}][\mathrm{m}]^{-1} \\ T_i &= [\mathrm{s}] \\ t &= [\mathrm{s}] \\ \omega_i &= [\mathrm{rad}][\mathrm{s}]^{-1} \end{cases} \tag{3.22}$$

Le premier pas consiste à rendre le moment magnétique sans dimension. Pour cela on divise l'équation de Bloch par le terme source M_0. Ensuite pour normaliser le champ de contrôle, on peut le diviser par une valeur de référence de la fréquence $\nu_{ref} = \omega_{ref}/(2\pi)$, qui permet d'éliminer la dimension du contrôle mais aussi celle du detuning. Dans le cas où une borne sur le champ est considérée, cette valeur de référence sera égale à la valeur de la borne. On introduit alors les quantités sans dimension

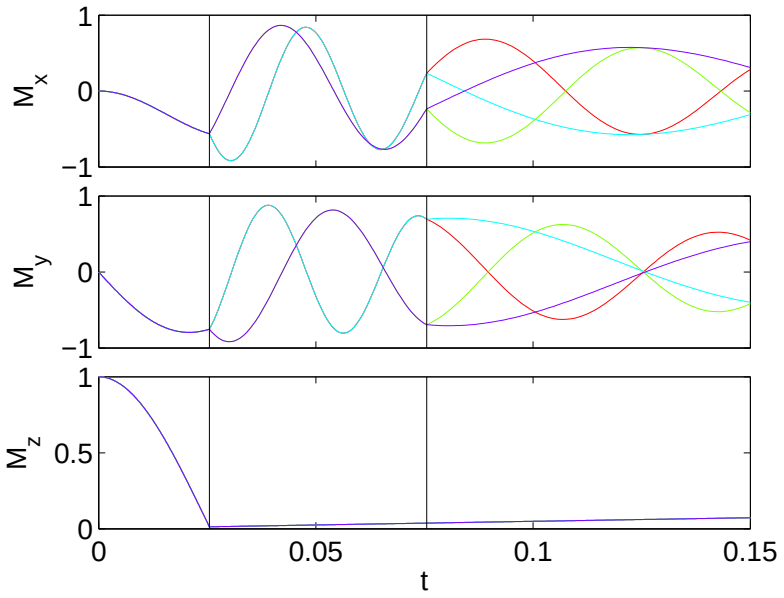


Fig. 3.5: Évolution des valeurs des composantes de l'aimantation de quatre points de l'échantillon. Avant la première ligne verticale noire, les quatre vecteurs aimantations sont basculés dans le plan transverse à z. Entre les deux lignes noires verticales, le gradient dit de phase est appliqué. Les spins se déphasent suivant leur position en y. Dans la dernière portion, le gradient de phase est coupé et le gradient de fréquence est appliqué et on mesure le signal. On constate que les spins évoluent à différentes fréquences suivant leur position en x, de plus les phases codées via le premier gradient sont conservées.

suivantes :

$$\begin{cases} \overrightarrow{x} &= \dfrac{\overrightarrow{M}}{M_0} \\ \tau &= \dfrac{\omega_{ref}}{2\pi} t \\ u &= \dfrac{2\pi\omega}{\omega_{ref}} \\ \Gamma &= \dfrac{2\pi}{\omega_{ref} T_2} \\ \gamma &= \dfrac{2\pi}{\omega_{ref} T_1} \\ \Delta &= \dfrac{2\pi\Delta\omega}{\omega_{ref}} \end{cases} , \tag{3.23}$$

l'équation de Bloch normalisée prend la forme suivante :

$$\begin{cases} \dot{x} &= -\Gamma x - \Delta y + u_y z \\ \dot{y} &= -\Gamma y + \Delta x - u_x z \\ \dot{z} &= \gamma(1-z) - u_y x + u_x y \end{cases} . \tag{3.24}$$

Dans toutes les parties suivantes traitant du contrôle optimal appliqué en IRM et en RMN, cette expression sera utilisée.

3.2.6 Effet de l'inhomogénéité des champs magnétiques

Jusqu'à présent le champ statique B_0 était supposé constant sur tout le volume de l'échantillon. Seulement expérimentalement, celui-ci est inhomogène. Cela signifie que si l'on néglige l'inhomogénéité longitudinale (selon z) alors le champ dépend de la position transverse considérée : $B_0(x, y)$. Au niveau de l'aimantation, cela signifie qu'elle va dépendre de la position transverse dans l'échantillon et on note alors $\overrightarrow{M}(x, y)$. En pratique, avant d'utiliser un appareil de RMN ou d'imagerie, il faut d'abord faire le "shimming", c'est-à-dire qu'à l'aide de quelques bobines, la distribution spatiale du champ est corrigée pour être la plus homogène possible. Cependant, il n'est pas possible d'éliminer complètement l'inhomogénéité et il faudra parfois en tenir compte dans les modèles comme nous l'expliquons ci-dessous.

La mesure à proprement parler se déroule de la manière suivante : l'aimantation de l'échantillon crée un champ magnétique et le flux de celui-ci au travers des spires de la bobine va induire un courant électrique à l'intérieur de celle-ci. On comprend alors que lors de la phase de préparation de l'échantillon (le basculement de 90°), à cause des différences de detuning introduites par l'inhomogénéité du champ statique, le basculement ne se fera pas de manière identique sur l'ensemble de la distribution de moments magnétiques, c'est se qui est représenté en rouge sur la figure (3.7). Cela signifie qu'expérimentalement, le courant mesuré dans la bobine sera plus faible qu'attendu. Ceci est une première conséquence qui est inversement proportionnelle à l'amplitude du champ. En effet, plus celui-ci est intense plus le basculement est rapide et moins les moments magnétiques ont le temps de tourner autour de l'axe z pendant la rotation vers le plan transverse.

Le problème le plus important apparaît lors de la mesure libre de l'aimantation. En effet, pendant qu'un moment magnétique aura fait un demi-tour autour de l'axe z, un autre moment magnétique avec un detuning différent pourra effectuer un tour complet, c'est se qui est représenté en bleu sur la figure (3.7). Cela se traduit par une annulation du champ magnétique total induit et donc une annulation du courant électrique mesuré. L'effet de l'inhomogénéité peut être modélisé par un terme dissipatif transverse plus fort. On le note alors T_2^* au lieu de T_2 avec $T_2^* < T_2$. Cette modélisation revient à considérer que le signal est produit par un ensemble de spins identiques. Seulement, dans certains cas (voir la partie (3.4)), cette description n'est pas suffisamment fidèle et la description microscopique de l'aimantation est nécessaire (par exemple pour simuler un écho de spin). Il ne faut plus décrire le courant mesuré qui est macroscopique mais l'aimantation qui est microscopique. La description microscopique correcte revient à passer d'un système à trois dimensions à un ensemble infini de systèmes à trois dimensions, ou en discrétisant la distribution de l'échantillon, à $3N$ dimensions, avec N le nombre de points utilisés pour la discrétisation. La dynamique s'écrit alors pour chaque

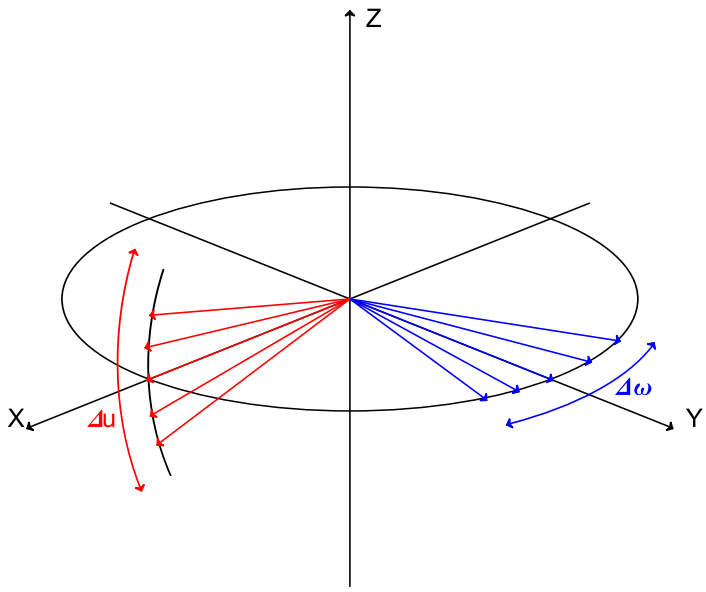


Fig. 3.6: Schéma représentant l'effet des inhomogénéités du champ de contrôle (en rouge) et du champ statique (en bleu). L'inhomogénéité du champ de contrôle à pour effet de ne pas faire basculer l'ensemble des spins du même angle. Il y a une dispersion de l'ensemble des aimantations. L'effet des inhomogénéités du champ statique consiste également en une dispersion des aimantations mais cette fois dans le plan transverse.

spin :

$$\begin{cases} \dot{M}_z(\Delta\omega) &= -\Delta\omega M_y(\Delta\omega) - \dfrac{1}{T_2}M_x(\Delta\omega) + \omega_y M_z(\Delta\omega) \\ \dot{M}_y(\Delta\omega) &= \Delta\omega M_x(\Delta\omega) - \dfrac{1}{T_2}M_y(\Delta\omega) - \omega_x M_z(\Delta\omega) \\ \dot{M}_z(\Delta\omega) &= \dfrac{1}{T_1}(M_0 - M_z(\Delta\omega)) + \omega_x M_y(\Delta\omega) - \omega_y M_x(\Delta\omega) \end{cases}, \tag{3.25}$$

avec $\Delta\omega = \omega - \omega_0$ le detuning qui dépend de la position du spin considéré dans l'échantillon. On peut alors noter $\Delta\omega = \Delta\omega(x, y, z)$. L'évolution de chaque spin dépend de son propre detuning, tandis que les paramètres dissipatifs T_1 et T_2 sont supposés identiques pour tous les spins de l'échantillon. On note alors le moment magnétique total : $\overline{M_i} = \int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{d}\Delta\omega g(\Delta\omega) M_i(\Delta\omega)$ avec $g(\Delta\omega)$ la fonction décrivant la distribution de detuning.

Il existe une autre inhomogénéité, celle du champ magnétique de contrôle $B_1(t)$ mais son action est différente de celle présentée précédemment. L'inhomogénéité du champ statique a un rôle de dérive dans la dynamique du système et est supposé constant au cours du temps. L'inhomogénéité du champ de contrôle signifie qu'il existe un facteur d'échelle constant au cours du temps sur tout l'échantillon, *i.e.* le champ de contrôle perçu par l'échantillon n'est pas identique sur tout le volume de l'échantillon. Imaginons que l'on cherche à basculer l'aimantation de 90°, cela signifie qu'un spin pourra basculer de 90° tandis qu'un autre aura basculé de 180° et un autre n'aura pas bougé (dans le cas extrême où le facteur d'échelle varie de 0 à 2). Mathématiquement, on peut modéliser le système (en supposant être

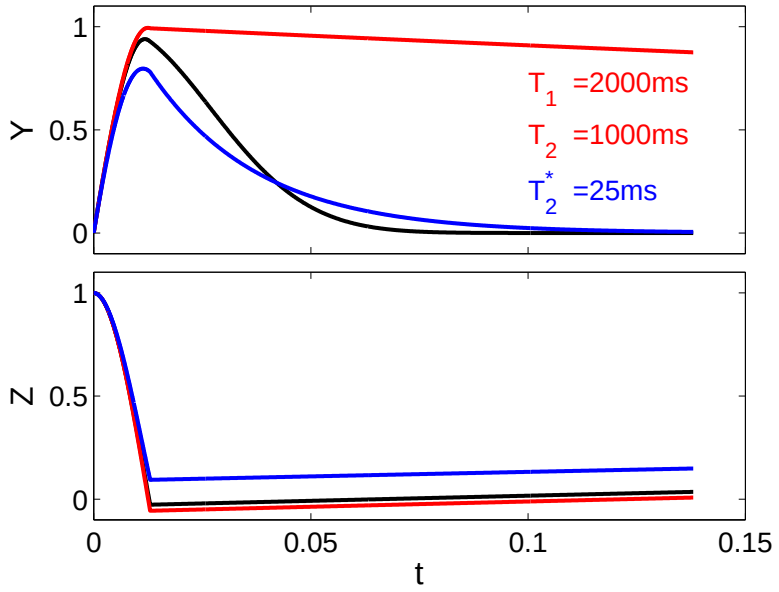


Fig. 3.7: Différence entre l'évolution libre de l'aimantation sans inhomogénéité (rouge), avec une inhomogénéité calculé à partir du modèle dit T_2^* (bleu) et évolution de l'aimantation avec un modèle tenant en compte la distribution d'inhomogénéité (noir).

à la résonance et le champ statique homogène) par :

$$\begin{cases} \dot{M}_z(a) &= -\dfrac{1}{T_2}M_x(a) + a\omega_y M_z(a) \\ \dot{M}_y(a) &= -\dfrac{1}{T_2}M_y(a) - a\omega_x M_z(a) \\ \dot{M}_z(a) &= \dfrac{1}{T_1}(M_0 - M_z(a)) + a\omega_x M_y(a) - a\omega_y M_x(a) \end{cases}, \tag{3.26}$$

où a dépend de la position dans l'échantillon. On note alors $a(x, y, z)$.

3.2.7 Effet du radiation damping

Tous les modèles que nous avons considérés jusqu'à présent étaient bilinéaires, *i.e.* linéaires par rapport à l'aimantation et linéaires par rapport au contrôle. Du fait du processus de mesure, des non-linéarités peuvent apparaître par rapport à l'aimantation. Cette section détaille ce type d'effet appelé effet de radiation damping.

Rappelons tout d'abord l'origine de cette non-linéarité dans le système. Celle-ci est liée au processus de mesure de l'aimantation. En effet, dans une mesure standard, l'aimantation induit un courant dans la bobine de mesure et en mesurant ce courant, on remonte à la dynamique de l'aimantation. Cependant, ce courant va à son tour induire un champ magnétique qui va influencer l'aimantation et ainsi modifier le courant mesuré. Cet effet qui est modélisé par des lois d'électromagnétisme classique induit un

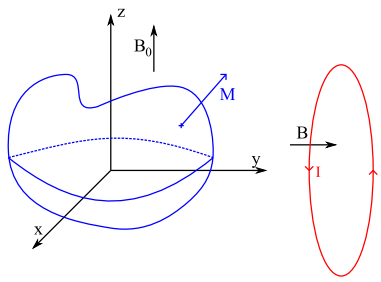


Fig. 3.8: Processus lié à la mesure de l'aimantation. L'aimantation microscopique $\vec{M}(x, y)$ de l'échantillon (en bleu) va induire un champ magnétique et le flux de ce champ magnétique au travers des spires de la bobine de mesure (en rouge) va induire un courant électrique mesurable.

terme non-linéaire dans les équations de Bloch. La non-linéarité est donc causée par un phénomène d'interaction mutuelle entre l'appareil de mesure et l'échantillon lui-même. Dans les appareils d'IRM ou de RMN, il existe un dispositif électronique qui permet de limiter l'effet de cette interaction. Malgré tout, il n'est pas possible d'éliminer complètement le phénomène. Pour prendre en compte ce phénomène, l'équation de Bloch doit être modifiée en ajoutant des termes quadratiques dépendants d'une constante de temps T_r caractéristique de la non-linéarité :

$$\begin{cases} \dot{M}_x &= -\dfrac{1}{T_2}M_x + \omega_y M_z - \dfrac{1}{M_0 T_r}M_x M_z \\ \dot{M}_y &= -\dfrac{1}{T_2}M_y - \omega_x M_z - \dfrac{1}{M_0 T_r}M_y M_z \\ \dot{M}_z &= \dfrac{1}{T_1}(M_0 - M_z) + \omega_x M_y - \omega_y M_x + \dfrac{1}{M_0 T_r}\left(M_x^2 + M_y^2\right) \end{cases} . \tag{3.27}$$

Après normalisation, le système prend la forme suivante :

$$\begin{cases} \dot{y} &= -\Gamma y - uz - kyz \\ \dot{z} &= \gamma(1 - z) + uy + ky^2 \end{cases} , \tag{3.28}$$

avec k le paramètre non-linéaire, $k = \dfrac{2\pi}{\omega_{ref} T_r}$. Il faut remarquer que la non-linéarité préserve la symétrie cylindrique du système et a une action non-unitaire. Cela signifie qu'elle a une action de dissipation.

3.3 Contrôle en temps minimum

3.3.1 Introduction

On s'intéresse désormais au contrôle de la dynamique des spins en RMN en utilisant des outils du contrôle optimal géométrique. Le contrôle de la dynamique des spins en temps optimal a déjà été abordé dans la littérature [14, 45, 46]. Les techniques utilisées dans ces travaux, par N. Khaneja et

ses collaborateurs, sont différentes des nôtres et principalement basées sur la structure de l'algèbre de Lie du système. L'objectif de cette section est de calculer le temps minimum requis pour saturer un spin ayant une dynamique dissipative [19], en utilisant un contrôle résonant, c'est-à-dire un contrôle dont la vitesse de rotation est identique à la vitesse de rotation de l'aimantation. Saturer l'aimantation (ou, par abus de langage, le spin) signifie que l'on cherche à annuler la norme du vecteur aimantation. Expérimentalement l'intérêt d'annuler l'aimantation d'une espèce chimique est important du point de vue de la spectroscopie. Par exemple, imaginant une molécule en présence d'un solvant, dont on veut analyser la structure par RMN, le fait de saturer l'aimantation du solvant permettra de supprimer ses composantes spectrales et de conserver uniquement les composantes spectrales de la molécule à analyser.

3.3.2 Contrôle optimal géométrique

Dans ce problème, on considère une borne m sur le contrôle, c'est-à-dire que $u \in U = [-m, m]$. Cette borne est tout-à-fait justifiable puisqu'expérimentalement il n'est pas possible de produire un champ de contrôle d'amplitude arbitrairement grande. Lorsque la condition de résonance est vérifiée ($\omega - \omega_0 = 0$) et en considérant un unique champ de contrôle, en se plaçant dans le repère tournant le système peut être réduit à deux dimensions. Du fait de la symétrie de révolution autour de l'axe z, nous ne perdons aucune généralité dans le traitement du problème. La dynamique restreinte à un plan s'écrit alors :

$$\begin{cases} \dot{y} &= -\Gamma y - uz \\ \dot{z} &= \gamma(1-z) + uy \end{cases} . \tag{3.29}$$

où on a supposé $u_x = 0$ et où on note $u = u_y$. Pour traiter le problème, la dynamique est décomposée sur les champs de vecteurs $F_0 = (-\Gamma, \gamma(1-z))$ et $F_1 = (-z, y)$. La dynamique est alors donnée par : $\dot{x} = F_0(x) + uF_1(x)$ avec $x = (y, z)$. On retrouve la forme de l'équation (2.15). En utilisant le PMP, le pseudo-Hamiltonien de notre problème de contrôle optimal est donné par :

$$H = pF_0(x) + upF_1(x) + p^0. \tag{3.30}$$

Dans le problème traité, le coût f^0 est constant. En effet, on cherche à minimiser le temps de contrôle, c'est-à-dire $C = \int_0^T \mathrm{d}t$ donc $f^0 = 1$. Comme le temps de contrôle est libre, on a la contrainte supplémentaire $H = 0$. On peut s'affranchir de la constante $p^0 \leq 0$ en définissant un nouvel hamiltonien : $\tilde{H} = H - p^0 \geq 0$ (Dans la suite, on oubliera le tilde). On peut alors écrire les équations de

Hamilton décrivant la dynamique du système dans l'espace des phases :

$$\begin{cases} \dot{x} &= \dfrac{\partial H}{\partial p} = F_0 + uF_1 \\ \dot{p} &= -\dfrac{\partial H}{\partial x} = -p\nabla_x F_0 - up\nabla_x F_1 \end{cases} . \tag{3.31}$$

A présent, intéressons-nous à la condition de maximisation :

$$u = \arg \max_{v\in[-m,m]} (H(v)) \tag{3.32}$$

Dans la section (2.4.1), nous avons vu que la condition de maximisation avec la contrainte d'une borne sur le contrôle nécessitait l'introduction de la fonction de commutation $\Phi = pF_1$ ainsi que de sa dérivée $\dot{\Phi} = p\,[F_0, F_1]$. Le crochet de Lie de F_0 et de F_1 s'écrit : $[F_0, F_1] = (-\gamma - \delta\gamma z, -\delta\gamma y)$. Rappelons que le contrôle peut alors prendre les valeurs suivantes :

$$\begin{cases} u = m \operatorname{sign} \Phi \\ \text{ si } \ \Phi = 0 \ : \ u = \pm m \to \mp m \\ \Phi = \dot{\Phi} = ... = 0 \ : \ u = u_s \end{cases} . \tag{3.33}$$

Afin de construire la synthèse optimale du système, nous devons introduire les structures géométriques caractéristiques du système. Commençons par déterminer la position du lieu de colinéarité. D'après la section (2.4.2), on a :

$$\begin{aligned} \det(F_0, F_1) &= \begin{vmatrix} -\Gamma y & -z \\ \gamma(1-z) & y \end{vmatrix} \\ &= -\Gamma y^2 + \gamma z(1-z), \end{aligned} \tag{3.34}$$

où $\delta = \Gamma - \gamma$. Il est représenté en vert sur la figure (3.9). Dans la section (2.4.2), le lieu singulier a été introduit dans le cas à deux dimensions et défini comme :

$$\begin{aligned} \det(F_0, [F_0, F_1]) &= \begin{vmatrix} -z & -\gamma - \delta\gamma z \\ y & -\delta\gamma y \end{vmatrix} \\ &= y\,(\gamma + 2\delta\gamma z)\,. \end{aligned} \tag{3.35}$$

Il est donc constitué de deux droites, une verticale d'équation $y_0 = 0$ et l'autre horizontale d'équation $z_0 = -\gamma/(2\delta\gamma)$. Elles sont représentées en bleu sur la figure (3.9). Il faut remarquer que si $\Gamma \geq 3\gamma/2$

alors la ligne singulière horizontale se situe en dehors de la boule de Bloch et il n'est donc pas possible de l'utiliser.

Nous venons de montrer où est localisée la projection sur l'espace des positions du lieu singulier (défini dans l'espace des phases). En d'autres termes, les lignes singulières sont la projection de l'espace singulier sur l'espace des positions, c'est-à-dire la projection de l'espace singulier sur la boule de Bloch. Cela signifie que si la trajectoire de l'aimantation intersecte une ligne singulière, cela ne suffit pas à dire que le point d'intersection appartient au lieu singulier de l'espace des phases, c'est-à-dire que F_0 et $[F_0, F_1]$ peuvent être parallèles sans pour autant que p soit orthogonal à ces deux vecteurs. Le champ singulier est calculé à partir de l'équation (2.20) et on trouve :

$$\begin{aligned} u_s &= -\frac{p[F_0,[F_0,F_1]]}{p[F_1,[F_0,F_1]]} \\ &= \frac{-y\gamma(\Gamma-2\gamma)-2yz(\gamma^2-\Gamma^2)}{2\delta\gamma(y^2-z^2)-\gamma z}. \end{aligned} \tag{3.36}$$

Cette expression se simplifie suivant que l'on considère le contrôle singulier permettant de se déplacer sur la singulière verticale ou horizontale. On obtient :

$$\begin{cases} u_s^v &= 0 \\ u_s^h &= \dfrac{\gamma(\gamma-2\Gamma)}{2\delta\gamma}\dfrac{1}{y} \end{cases}, \tag{3.37}$$

où les indices h et v désignent respectivement les singulières horizontale et verticale. Sur la singulière verticale, on remarque que le contrôle singulier consiste à laisser agir la dissipation longitudinale. Sur la singulière horizontale, le contrôle hyperbolique u_s^h permet de compenser en partie l'effet de la dissipation pour se déplacer horizontalement. Nous reviendrons sur ces différents points au moment de trouver une interprétation physique des singulières.

Les différents objets nécessaires à la construction de la synthèse étant en place, nous pouvons décrire sa construction. La première étape consiste à construire l'ensemble accessible, c'est-à-dire déterminer le sous-ensemble de la boule de Bloch que l'on peut atteindre depuis le point d'équilibre thermodynamique $(0,1)$ à l'aide de contrôle respectant la contrainte $u \in [-m, m]$. En effet l'action de la dissipation est de ramener l'aimantation à l'équilibre thermodynamique, cette action non-unitaire de l'environnement sur l'aimantation n'autorise pas à atteindre n'importe quel point de la boule de Bloch. Cette construction se fait numériquement de manière simple. Il suffit de réaliser un tir avec un bang d'amplitude $\pm m$ pour atteindre le point appartenant à l'axe z opposé au pôle nord. La zone d'accessibilité est définie par l'ensemble des points pouvant être atteints par le contrôle. Elle est

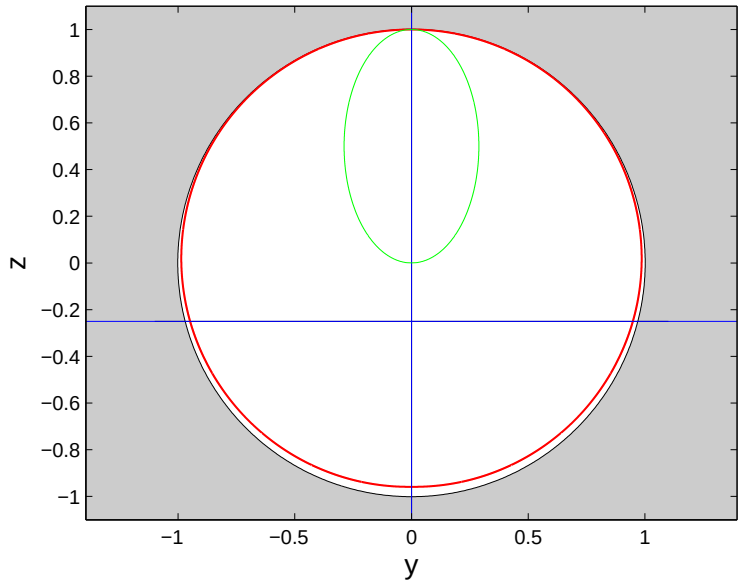


Fig. 3.9: Représentation des différentes structures géométriques. En rouge on a représenté le bord de l'ensemble accessible, en bleu les lignes singulières et en vert le lieu de colinéarité. Depuis le point d'équilibre $(0, 1)$, à cause de l'action non-unitaire de la dissipation, avec une borne sur le contrôle, il ne sera pas possible d'atteindre n'importe quel point de la boule Bloch et seul un sous ensemble de la boule de Bloch est accessible.

représentée en rouge sur la figure (3.9).

Ensuite, il faut déterminer si les singulières sont lentes ou rapides. Pour cela, on utilise la forme horloge définie dans la section (2.4.2). La singulière horizontale est localement optimale tandis que la singulière verticale est localement optimale seulement si $z \geq z_0$.

3.3.3 Construction de la synthèse optimale

On peut débuter la construction de la synthèse en partant du point d'équilibre, noté E sur la figure (3.10). Cette figure est un schéma permettant d'illustrer la structure de la synthèse et ne représente pas la synthèse associée à un cas réel. En utilisant de vraies trajectoires solutions de l'équation de Bloch, certaines parties seraient trop petites pour être clairement visibles. Sur cette figure, les trajectoires rouges sont les trajectoires $-m$, les bleues sont les trajectoires $+m$ et les vertes sont singulières. Partant du point E, on peut satisfaire la condition $\Phi = 0$ le long de cette trajectoire et donc il est possible d'atteindre toute la zone EAD par des contrôles bang-bang $-m \to +m$. Ces trajectoires sont optimales. Pour atteindre les points compris entre E et D, une autre possibilité est d'aller au point le plus au sud puis de suivre la singulière verticale. Celle-ci étant non-optimale pour $z \leq z_0$, on en déduit que la première solution est la meilleure.

La trajectoire partant de E va atteindre le point A. Il est ensuite plus rapide, comparé à une

solution bang-bang ,de suivre la singulière horizontale pour atteindre les points entre A et B. En effet, la singulière est localement optimale, elle n'est donc pas à exclure de la synthèse. Une comparaison numérique directe entre les deux structures de contrôle confirme ce raisonnement.

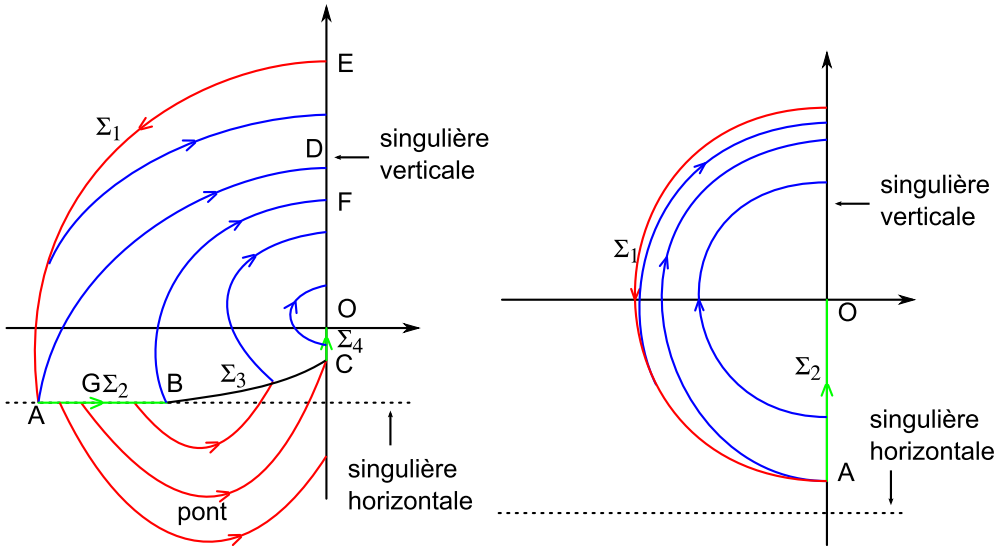


Fig. 3.10: (Gauche) Schéma de la synthèse optimale pour $\Gamma \geq 3\gamma/2$. (Droite) Schéma de la synthèse pour $\Gamma \leq 3\gamma/2$. La ligne constituée des arcs Σ_1, Σ_2, Σ_3 et Σ_4 correspond à une ligne de commutation, c'est-à-dire que le long de cette ligne, le contrôle peut soit changer de signe soit changer de structure.

Partant d'un point entre A et B, on peut utiliser un contrôle bang $+m$ ou $-m$ pour atteindre respectivement les points entre D et F ou en dessous de C. La trajectoire bang reliant B et F est optimale car si on utilisait un contrôle $-m$, on atteindrait la singulière verticale sur sa section lente (non optimale). Pour les trajectoires de type bang reliant les points B et G, le même raisonnement s'applique. Pour atteindre le point C, la seconde solution consiste à emprunter le bord de l'ensemble accessible (donc une trajectoire bang) jusqu'au sud puis la singulière verticale lente.

La partie la plus intéressante et non intuitive de la synthèse se trouve dans la région GBCOF. B étant le point limite d'admissibilité de la singulière horizontale (le point où le contrôle atteint la borne de son domaine de définition, *i.e.* $u = m$), la singulière est donc optimale seulement entre A et B. La trajectoire GC est très particulière, en effet il faut se souvenir que le PMP est défini dans l'espace des phases (x, p), alors que jusqu'ici toutes les trajectoires aperçues peuvent être construites dans l'espace physique de coordonnées (x). Cependant, pour définir la trajectoire GC on doit absolument travailler dans l'espace total (x, p). En effet, cette trajectoire est l'unique trajectoire qui nous autorise à quitter la singulière horizontale pour aller ensuite sur la singulière verticale. Elle respecte donc les conditions suivantes :

$$\begin{cases} \Phi(G) = \dot{\Phi}(G) = 0 \\ \Phi(C) = \dot{\Phi}(C) = 0 \end{cases} . \tag{3.38}$$

On appelle ce type de trajectoire bang, un pont car elle permet de relier deux points de la surface singulière. La singulière entre C et O étant localement optimale, on doit l'utiliser pour atteindre le point O depuis C. De plus, on vérifie numériquement qu'il est plus rapide d'utiliser une trajectoire $+m$ partant entre O et C pour atteindre les points entre O et F.

Pour finir la construction de la synthèse, on constate qu'il y a un conflit entre les trajectoires $-m$ se situant en dessous de GBC et les trajectoires $+m$ partant de OC. Il manque donc un dernier objet permettant de délimiter la séparation des trajectoires $+m$ et $-m$. La fonction de switch sert justement à faire commuter le contrôle. En arrivant à la limite d'admissibilité sur la singulière horizontale, on sait qu'une ligne de switch doit émerger de ce point, cette propriété est démontrée dans le livre [5]. Cette ligne se situe entre les points B et C. Elle est définie par le fait que la fonction Φ s'annule le long de celle-ci. Ce dernier point conclut la construction de la synthèse optimale. Si $\Gamma \leq \frac{3}{2}\gamma$, on constate sur la figure (3.10) que la synthèse est beaucoup plus simple. Dans ce cas, la singulière se trouve en dehors de la boule de Bloch et donc en dehors de l'ensemble accessible. Les seules trajectoires existantes sont des trajectoires bang-bang qui commutent sur l'arc Σ_1 et des trajectoires BS qui empruntent la singulière verticale sur la partie notée Σ_2.

3.3.4 Saturation d'un spin 1/2

En utilisant ces résultats, on peut déterminer la solution pour saturer l'aimantation en temps minimum. La solution est donnée par la trajectoire EAGCO, le contrôle est donc de type bang-singulier-bang-singulier. Cette synthèse est robuste par rapport aux paramètres dissipatifs. Ici robuste signifie qu'elle ne subit que des déformations lisses et que qualitativement la structure ne change pas (sauf si le rapport des paramètres dissipatifs devient supérieur à 3/2). Pour cela, il faut montrer que si la singulière appartient à l'ensemble accessible alors le point d'admissibilité appartient également à l'ensemble accessible. Pour le montrer, il faut considérer deux cas limites pour la valeur de m. Le premier cas est celui où seulement un point de la singulière horizontale appartient à l'ensemble accessible, c'est-à-dire :

$$\begin{cases} z &= z_0 \\ \dot{z} &= 0 \end{cases}, \tag{3.39}$$

cette situation correspond à la figure (3.11) droite. On en déduit que $\gamma(1-z_0)+my = 0$ et on reconnaît ici les coordonnées du point d'admissibilité (le point de la singulière horizontale où le contrôle singulier vérifie $u = m$, *i.e.* il appartient au bord de son domaine de définition). La seconde situation est celle où la borne m tend vers l'infini. Dans ce cas, la position du point d'admissibilité de la singulière horizontale variant comme $1/y$ tend vers $(0, z_0)$ pendant que l'ensemble accessible tend à recouvrir

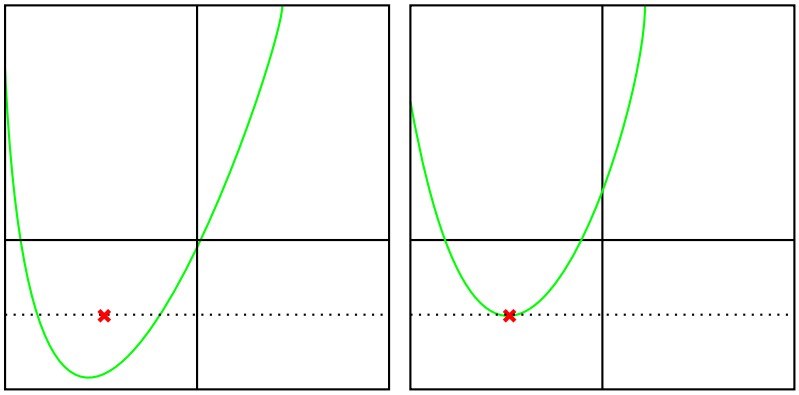


Fig. 3.11: Schémas montrant la position du point d'admissibilité (en rouge) par rapport à la singulière horizontale (trait discontinu) et la limite de l'ensemble admissible (ligne verte). (Gauche) Point admissible dans l'ensemble accessible. (Droite) Point admissible sur le bord de l'ensemble accessible, on respecte les conditions (3.39).

l'ensemble de la boule Bloch. Partant du premier cas où seul le point d'admissibilité appartient à l'ensemble accessible, en faisant varier la borne m, on va déplacer le point d'admissibilité vers $y = 0$ tout en augmentant la taille de l'ensemble accessible. La singulière est accessible pour $m \in [m_0, \infty[$ avec m_0 la valeur limite de la borne pour que le point d'admissibilité appartienne au bord de l'ensemble accessible. Cela signifie que l'on aura jamais de solution du type bang-singulière-bang-singulière pour laquelle le premier contrôle singulier arrive à saturation, c'est-à-dire $u_s = m$. La trajectoire quittera toujours l'ensemble singulier avant la saturation du contrôle.

A présent, intéressons-nous à l'influence de la borne m sur la valeur du temps minimum. Il est possible de montrer qu'il existe une limite de temps intrinsèque au système pour saturer l'aimantation. C'est-à-dire que même si la borne tend vers l'infini, le temps minimum n'est pas nul. Lorsque la borne est infinie, la trajectoire EAGCO se réduit à EACO avec G, B et C confondus en un seul point. En effet, la borne m tendant vers l'infini le point d'admissibilité B tend vers $y = 0$. Le calcul du temps minimum se réduit à calculer le temps mis pour parcourir les arcs AC et CO (le bang d'amplitude infini permet de parcourir EA en un temps infinitésimal), avec A= $\left(-\sqrt{1-z_0^2}, z_0 = \dfrac{T_2}{2(T_2-T_1)}\right)$. Le deuxième arc consiste à suivre la singulière horizontale. On a :

$$\begin{cases} \dot{y} &= -\dfrac{1}{T_2}y - u_s z_0 \\ u_s &= -\dfrac{1}{2T_1}\dfrac{2T_1 - T_2}{T_1 - T_2}\dfrac{1}{y} \end{cases} . \tag{3.40}$$

Ces équations se réduisent à :

$$\dot{y} = -\frac{1}{T_2}y - \frac{2T_1 - T_2}{4(T_1 - T_2)^2}\frac{T_2}{T_1}\frac{1}{y}, \tag{3.41}$$

et en faisant le changement de variable $Y = y^2$, on trouve :

$$\dot{Y} = -2\Gamma Y - a, \tag{3.42}$$

avec $a = \dfrac{2T_1 - T_2}{2(T_1 - T_2)^2}\dfrac{T_2}{T_1}$. La solution est $Y(t) = \left(\dfrac{aT_2}{2} + Y(0)\right) e^{-2\frac{t}{T_2}} - \dfrac{aT_2}{2}$.

Le point de départ est $Y(0) = 1 - z_0^2$ et le point final le long de la singulière est $Y(t) = 0$. On trouve alors $t_2 = \dfrac{T_2}{2}\ln\left(1 + \dfrac{2Y(0)}{aT_2}\right)$. La dernière partie utilise la singulière verticale, c'est-à-dire un contrôle nul et seul l'action de la dissipation est à considérer. On a :

$$\dot{z} = \frac{1}{T_1}(1 - z). \tag{3.43}$$

La solution de cette équation est $z(t) = (z(0) - 1)e^{-\frac{t}{T_1}} + 1$, avec $z(0) = z_0$, et en inversant cette équation, on trouve $t_3 = T_1 \ln(1 - z_0)$. Finalement, on a :

$$\begin{cases} T_{opt} &= \dfrac{T_2}{2}\ln\left(1 + \dfrac{2(1 - z_0^2)}{aT_2}\right) + T_1 \ln(1 - z_0) \\ T_{IR} &= T_1 \ln 2 \end{cases}, \tag{3.44}$$

avec T_{IR} le temps caractéristique de la solution intuitive d'inversion appelée inversion recovery sequence (IR)[47]. Cette solution pour saturer les spins est standard en RMN. Elle nous servira de point de comparaison pour tester l'efficacité de notre solution optimale. La solution IR consiste à utiliser un bang pour atteindre le pôle sud puis à laisser agir la dissipation pour saturer le spin. Le temps limite associé à cette solution se calcule alors à l'aide de l'expression de t_3. La figure (3.12) représente l'évolution du rapport entre le temps minimum et le temps de la solution IR. On constate que dans la partie supérieure de la figure, le rapport est homogène en fonction de T_1 et T_2 et égal à un, cela signifie que pour ces valeurs de paramètres, la singulière est en dehors de la boule de Bloch et donc la solution IR devient la solution optimale car elle est la seule structure de contrôle accessible permettant de contrôler la position radiale du spin. Il est important de comprendre que physiquement le système n'est pas contrôlable en dessous d'un temps critique et ce, quelque soit la valeur sur la borne du champ. Ceci signifie que même en utilisant une quantité d'énergie infinie, on ne pourra jamais contrôler le système de manière instantanée. Ce point est dû au fait que le contrôle a une action unitaire et il ne permet pas de contrôler le module de l'aimantation. Seule la dissipation peut le modifier. Le but du contrôle sera comme on le verra ci-dessous d'utiliser la dissipation de la manière la plus efficace possible pour atteindre l'aimantation nulle en temps minimum.

La figure (3.13) représente l'évolution du rapport du temps minimum et du temps de la solution

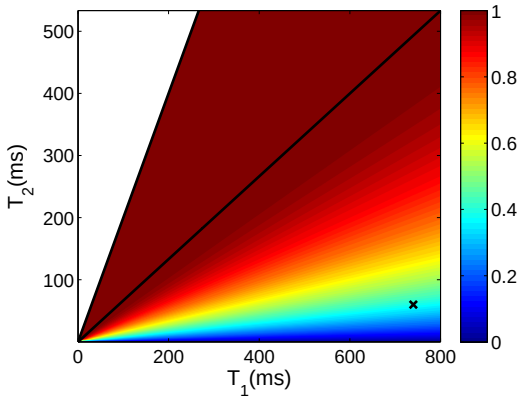


Fig. 3.12: Rapport entre T_{opt}/T_{IR} en fonction des paramètres dissipatifs T_1 et T_2. Le marqueur correspond aux coordonnées particulières $T_1 = 740$ms et $T_2 = 60$ms. Pour cette valeur particulière, le rapport vaut 0.389

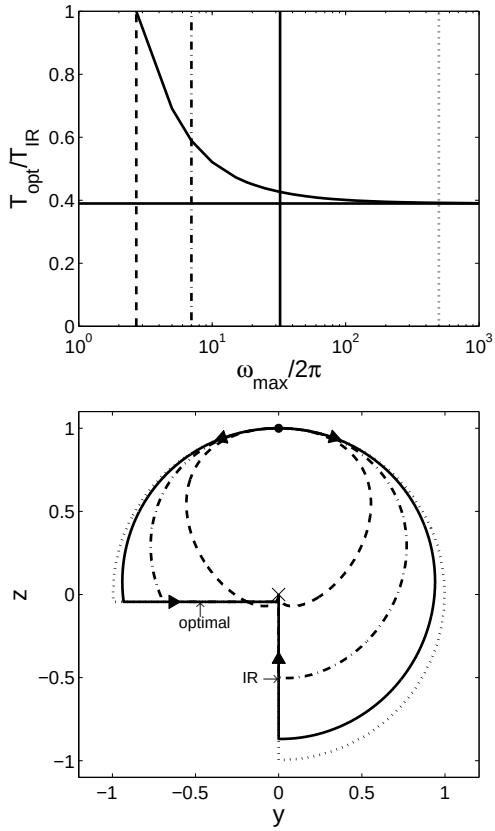


Fig. 3.13: (Haut) Évolution du rapport T_{opt}/T_{IR} pour le jeu de paramètres ($T_1 = 740$ms$, T_2 = 60$ms) en fonction de la borne ω_{max}. La ligne horizontale représente la limite analytique quand ω_{max} tend vers l'infini. Les quatre lignes verticales repèrent les bornes $\omega = 2.7$, 7, 32.3, 500Hz. (Bas) Trajectoires optimale et IR associées aux quatre valeurs précédentes.

intuitive en fonction de la valeur de la borne. La courbe s'arrête vers $\omega_{max} = 2.7$Hz. Pour des valeurs plus faibles le centre de la boule $(0,0)$ n'appartient plus à l'ensemble accessible. Sur la figure du bas, on constate que la trajectoire correspondant à $\omega_{max} = 2.7$Hz utilise un contrôle constitué d'un unique bang pour saturer le spin. On retrouve sur la courbe supérieure le comportement asymptotique attendu quand la valeur de la borne tend vers l'infini. Pour les valeurs de T_1 et T_2 choisies, le ratio limite du temps minimum sur le temps associé à la solution IR est d'environ 0.389.

Le rôle des singulières dans la synthèse a été vu du point de vue du contrôle optimal, mais quel est physiquement le rôle de ces singulières ? Pour répondre à cette question, il faut changer de coordonnées et utiliser les coordonnées polaires telles que $(y = r\cos\theta, z = r\sin\theta)$. La dynamique s'écrit alors :

$$\begin{cases} \dot{r} &= -(\Gamma\cos^2\theta + \gamma\sin^2\theta)r + \gamma\sin\theta \\ \dot{\theta} &= -\dfrac{\gamma+\Gamma}{2}\sin 2\theta + \dfrac{\gamma}{r}\cos\theta + u \end{cases} . \tag{3.45}$$

Dans ces coordonnées, il faut remarquer que la fonction de switch se réduit à une forme très simple $\Phi = p_\theta$ et le contrôle est uniquement déterminé par le signe de p_θ. Pour comprendre le sens physique des singulières, il faut calculer la dérivée de $\dot{r}$ par rapport à θ :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \dot{r}}{\partial \theta} &= -(\gamma - \Gamma)r\sin 2\theta + \gamma\cos\theta \\ &= \frac{y}{\sqrt{y^2+z^2}}\left[\gamma - 2(\gamma-\Gamma)z\right]. \end{aligned} \tag{3.46}$$

On constate alors que la dérivée par rapport à θ de la vitesse radiale s'annule sur les singulières verticale et horizontale. En effet, on trouve que : $\dfrac{\partial \dot{r}}{\partial \theta} = \det(F_0, [F_0, F_1])$. De plus, si on regarde où se situent le maximum et le minimum de vitesse, on constate que la vitesse radiale est maximale selon la singulière horizontale et minimale selon la singulière verticale. Le rôle du champ singulier est donc de lutter contre la dérive angulaire afin de rester sur le lieu où la vitesse radiale est maximale. De plus, la solution intuitive utilise la singulière verticale or on vient de montrer que cette solution est lente. Cela confirme que la solution intuitive n'est pas optimale.

Le dernier point concerne la mise en œuvre expérimentale de la solution obtenue. En effet, la solution est loin d'être une solution lisse, c'est-à-dire que le champ de contrôle subit de fortes variations. Notamment lors du passage du premier bang à la singulière, le contrôle subit un saut de la valeur ω_{max} à quasiment 0. On peut alors se demander s'il est possible d'utiliser une telle séquence de contrôle expérimentalement. La réponse est positive. En effet, en RMN, le temps caractéristique de mise en forme du champ de contrôle étant de l'ordre de la nanoseconde à la microseconde, il va être possible de générer des variations rapides de la séquence de contrôle.

Les expériences ont été conduites à Munich par l'équipe du professeur Steffen Glaser. Expérimentalement, les deux séquences de contrôle sont implémentées dans un appareil standard de RMN, un spectromètre Bruker Avance 250MHz [2]. Les expériences sont menées sur le proton de l'eau H_2O. L'échantillon consiste en un mélange de 10% d'eau, 45% d'eau lourde D_2O et 45% de Glycérol saturé par du sulfate de cuivre $CuSO_4$. Le mélange est effectué tel que ces paramètres dissipatifs soient $(T_1 = 740\text{ms}, T_2 = 60\text{ms})$. L'amplitude maximale est fixée à $\omega_{max} = 2\pi \times 32.3\text{Hz}$. La manipulation est réalisée à température ambiante, soit $T \approx 298K$.

La figure (3.14) montre que les trajectoires théoriques reproduisent fidèlement les points expérimentaux (précision de l'ordre du pourcent). Étant donné le très bon accord expérience théorie obtenu, ce premier résultat expérimental confirme que les lois de contrôle optimal déterminées théoriquement peuvent être implémentées expérimentalement avec une très bonne précision pour l'étude de systèmes de RMN et IRM.

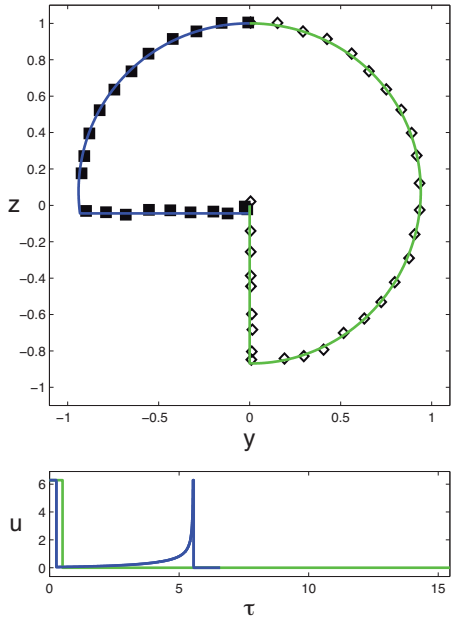


Fig. 3.14: (Haut) En trait plein, trajectoires correspondant au cas $(T_1 = 740\text{ms}, T_2 = 60\text{ms})$, avec en vert et bleu respectivement, la solution intuitive et la solution optimale. (Bas) Séquence de contrôles utilisées. Les carrés noires et les losanges blancs sont les points mesurés expérimentalement. Il est nécessaire de rappeler que la variation rapide entre le second bang et la seconde singulière est réalisable expérimentalement car le temps caractéristique de la dynamique est de l'ordre de la milliseconde et que donc une modulation temporelle du contrôle est envisageable.

2. C'est un appareil commercial et aucun changement n'est requis pour pouvoir implémenter la solution.

3.4 Rôle de l'effet de radiation damping

Cette section a pour but de traiter le problème de la saturation en temps minimum de la section précédente mais lorsque la dynamique devient non-linéaire, *i.e.* lorsque l'effet de radiation damping est pris en compte. Le modèle de la dynamique est alors celui de la section (3.2.7). Les champs de vecteurs de la dynamique deviennent : $F_0 = (-\Gamma y - kyz, \gamma(1-z) + ky^2)$ et $F_1 = (-z, y)$. Nous allons voir que la non-linéarité ne va pas changer fondamentalement les objets définis précédemment, en particulier les lieux de colinéarité et singuliers. Malgré tout, plusieurs résultats vont être modifiés. En particulier, suivant la valeur du paramètre non-linéaire k, la synthèse optimale peut complètement changer avec l'apparition d'un lieu de Maxwell ou lieu de recouvrement. C'est un lieu où deux trajectoires issues d'un même point initial arriveront à un même point final en un temps identique mais en empruntant deux chemins différents.

Commençons l'étude par le calcul des différents objets géométriques introduis dans la section (2.4.2). Le lieu de colinéarité n'est pas modifié, on trouve alors :

$$\begin{aligned}\det(F_0, F_1) &= \begin{vmatrix} -\Gamma y - kyz & -z \\ \gamma(1-z) + ky^2 & y \end{vmatrix} \\ &= -\Gamma y^2 + \gamma z(1-z). \end{aligned} \tag{3.47}$$

La fonction de switch reste la même car le champ de vecteur F_1 n'est pas modifié par la non-linéarité. En revanche, sa dérivée qui s'exprime comme $\dot{\Phi} = p[F_0, F_1]$ dépend de la dérive du système F_0 et va donc être modifiée. Le crochet s'écrit comme :

$$[F_0, F_1] = \begin{pmatrix} -\gamma - \delta\gamma z - kz^2 \\ -\delta\gamma z + kyz \end{pmatrix}, \tag{3.48}$$

où $\delta = \Gamma - \gamma$. Malgré la modification de la dérivée de la fonction de switch, le lieu singulier n'est pas changé. Son expression devient :

$$\begin{aligned}\det(F_0, [F_0, F_1]) &= \begin{vmatrix} -z & -\gamma - \delta\gamma z - kz^2 \\ y & -\delta\gamma y + kyz \end{vmatrix} \\ &= y\left(\gamma + 2\delta\gamma z\right). \end{aligned} \tag{3.49}$$

Pour l'instant, les structures géométriques introduites n'ont pas changées, en revanche l'expression du

champ singulier est modifiée :

$$\begin{aligned} u_s &= -\frac{p[F_0,[F_0,F_1]]}{p[F_1,[F_0,F_1]]} \\ &= \frac{2yz(\Gamma^2-\gamma^2)+\gamma y(2\gamma-\Gamma)+k(\gamma yz+2\delta\gamma(z^2-y^2)y)}{2\delta\gamma(y^2-z^2)-\gamma z}. \end{aligned} \tag{3.50}$$

Les expressions des champs singuliers sur les lignes singulières verticale et horizontale deviennent :

$$\begin{aligned} u_s^v &= 0 \\ u_s^h &= \frac{\gamma(\gamma-2\Gamma)}{2\delta\gamma}\frac{1}{y}+ky. \end{aligned} \tag{3.51}$$

Le champ singulier vertical n'est pas modifié. En revanche, le champ singulier horizontal possède un terme supplémentaire qui dépend de la position transverse du système et du paramètre non-linéaire k. Cela signifie que la position du point d'admissibilité est également modifiée. De plus, celui-ci n'est plus unique mais il se scinde en deux. Ses coordonnées sont :

$$\left\{ \begin{array}{rl} y_\pm &= \dfrac{m\pm\sqrt{m^2-4ak}}{2k} \\ a &= \dfrac{\gamma(\gamma-2\Gamma)}{2\delta\Gamma} \end{array} \right. , \tag{3.52}$$

avec $a=\dfrac{\gamma(\gamma-2\Gamma)}{2\delta\gamma}$. Si k tend vers 0, on constate que la solution y_- tend vers le point d'admissibilité du cas sans non-linéarité $y=-a$ pour $m>0$ et que la solution y_+, quant à elle, tend vers l'infini et quitte donc la boule de Bloch. Pour k petit, la singulière a un comportement quasi-identique au cas linéaire. Malgré tout, il est difficile de généraliser l'argument stipulant que si le point d'admissibilité appartient à l'ensemble accessible alors la singulière est utilisée par la synthèse optimale.

A présent, regardons l'influence de la non-linéarité sur la position des points fixes. Il est possible de réécrire les paramètres du système sous la forme :

$$\left\{ \begin{array}{l} m \\ \gamma \\ \Gamma=\gamma/2+\epsilon, \quad \epsilon\geq 0 \\ k=\dfrac{m^2}{3\gamma}-(1/2\gamma+\epsilon)+\upsilon \end{array} \right. . \tag{3.53}$$

Ceci signifie que l'on remplace les paramètres (m,γ,Γ,k) par $(m,\gamma,\epsilon,\upsilon)$ qui seront plus adaptés à la description du problème. Sans non-linéarité, la dynamique possédait un seul point fixe qui appartenait au lieu de colinéarité. Dans le cas non-linaire, la situation devient plus complexe car ce point peut

devenir triple. Le point fixe satisfait l'équation suivante :

$$y^3 + 2\frac{m}{k}y^2 + \frac{\left(k\gamma + m^2 + \gamma\left(1/2\gamma + \epsilon\right)\right)}{k^2}y + \frac{m\gamma}{k^2} = 0. \tag{3.54}$$

Pour que le point fixe soit triple, il faut choisir $\upsilon < 0$ ainsi que m et γ tels que , $\epsilon \in]\epsilon_-, \epsilon_+[$ et $\epsilon_+ > 0$, avec $\epsilon_\pm$ deux valeurs dépendantes de m, γ et υ (voir annexe (8.1)). Lorsque $\upsilon < 0$ et $\epsilon = \epsilon_\pm > 0$, le point fixe n'est pas triple mais double. Autrement, le point fixe est unique.

Le point d'équilibre du système se divise également si $\upsilon \leq -\frac{m^2}{3\gamma}$. On imagine donc que suivant la valeur de $(m, \gamma, \epsilon, \upsilon)$, la dynamique du système et donc la synthèse optimale vont complètement changer. Les modifications géométriques liées à la non-linéarité étant établies, on peut détailler maintenant la synthèse optimale dans deux cas, un premier avec le paramètre υ positif, et un second avec υ négatif et m et γ tels que le point fixe soit triple.

3.4.1 Cas $k > 0$ et point fixe simple

Ce cas est physiquement réaliste, c'est-à-dire que $k > 0$, ce qui correspond à un temps de relaxation T_r positif. Les paramètres utilisés sont : $T_1 = 2000$ms, $T_2 = 23$ms et $T_r = 13.7$ms, ce qui correspond à $\gamma = 0.015$, $\Gamma = 1.31$, $k = 2.26$ avec $\omega_{max} = 32.3$Hz. Dans ce cas, on retrouve une synthèse proche du cas sans non-linéarité. La trajectoire saturant le spin en temps minimum prend alors la forme de la trajectoire verte de la figure (3.15), avec une structure de contrôle BSBS. Pour rappel, cette structure de contrôle utilise un premier bang pour atteindre la singulière horizontale d'équation $z = z_0$. Ensuite, la trajectoire suit cette ligne singulière horizontale et la quitte avant le point d'admissibilité en un point qui correspond à l'origine de la seconde trajectoire bang. Ce second bang correspond à la trajectoire qui atteint la singulière verticale au point d'intersection avec la ligne de switch. Après avoir suivi cette trajectoire bang, il suffit de continuer sur la ligne singulière verticale d'équation $y = 0$ avec un champ singulier nul pour atteindre le centre de la boule de Bloch. Sur la figure (3.15), on a représenté la comparaison entre la solution du modèle avec effet non-linéaire à gauche et sans effet non-linéaire à droite. La première différence visible est sur la taille de l'ensemble accessible. On a constaté précédemment que la non-linéarité agissait telle un terme dissipatif (d'où le terme "damping"), c'est ce que l'on retrouve sur cette figure. L'ensemble accessible est plus petit en présence de non-linéarité. On constate également que la forme du champ singulier est modifiée. La non-linéarité agissant comme un terme dissipatif, le champ singulier s'adapte pour pouvoir compenser le terme supplémentaire de dissipation. Pour finir, on observe que la structure globale de la solution est identique.

L'étape suivante consiste à implémenter expérimentalement cette solution. Cependant, pour pou-

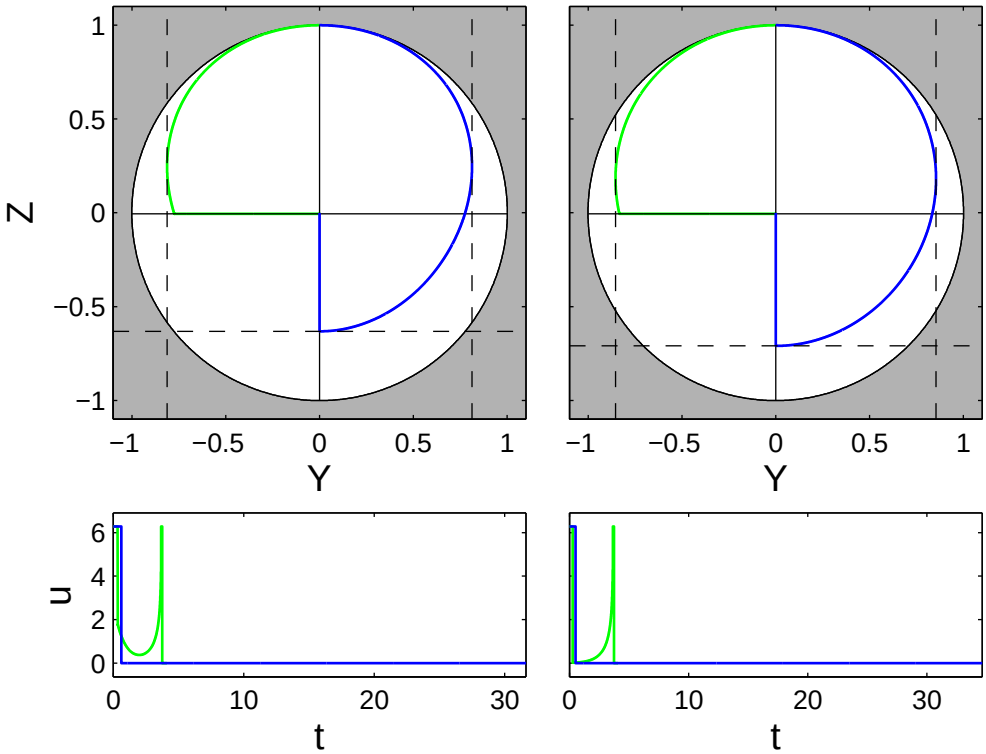


Fig. 3.15: (Haut)En vert, solution temps minimum et en bleu, solution intuitive dite d'inversion recouvrement. Les paramètres utilisés sont $T_1 = 2000$ms, $T_2 = 23$ms et $T_r = 13.7$ms. A gauche, on a la solution avec non-linéarité et à droite la solution linéaire avec $k = 0$. Une comparaison visuelle permet de voir des différences dans la taille de l'ensemble accessible et dans la forme du champ singulier. Les paramètres T_1 et T_2 sont identiques pour les deux cas. Les droites en pointillés sont des repères visuelles pour différentier les trajectoires. (Bas) Lois de contrôles optimales et intuitives utilisées dans les deux exemples.

voir avoir un effet non-linéaire suffisamment important, il faut désinstaller le système électronique qui permet de l'atténuer. De plus, on ne pourra pas considérer que le champ statique est homogène sur l'ensemble de l'échantillon. Cela signifie qu'une partie de l'échantillon va percevoir un champ magnétique plus intense que dans le reste de l'échantillon. Ceci induit une distribution de detuning, ce qui implique que le signal macroscopique va décroître plus rapidement dans la direction transverse (section (3.2.6)). Cet effet provient du fait que microscopiquement chaque aimantation va tourner autour du champ statique à des vitesses différentes. Le décalage angulaire de toutes les aimantations microscopiques implique une valeur du signal macroscopique plus faible que si toutes les aimantations microscopiques avaient été en phase.

Sur la figure (3.16), on peut observer les résultats expérimentaux. Ces expériences ont été menées à Munich par l'équipe du professeur Steffen Glaser. On constate que les points expérimentaux correspondant à la solution optimale, notamment après le premier bang, s'écartent de manière significative de celle-ci. De plus, cet écart est lisse, c'est-à-dire qu'il n'y a pas une distribution aléatoire de points expérimentaux autour de la solution optimale, ce qui tend à justifier le fait qu'il manque un élément dans le modèle décrivant la dynamique du système.

Pour tenir compte de cet effet, une première approche consiste à calculer une nouvelle loi de contrôle optimal géométrique à partir du modèle en T_2^*. La forme de la dynamique est la même et la dissipation transverse T_2 est remplacée par un terme de dissipation plus important noté T_2^* (section (3.2.6)) pour prendre en compte l'effet macroscopique de l'inhomogénéité. Cependant, expérimentalement, cette loi de contrôle optimal ne permet pas de compenser suffisamment cet effet. C'est ce que l'on constate sur la figure (3.16). Il faut alors utiliser le deuxième modèle introduit dans la section (3.2.6).

Une seconde méthode pour décrire la distribution de detuning consiste à introduire une approche microscopique dépendante de Δ et représentative de la distribution physique des fréquences. La dynamique prend alors la forme suivante :

$$\begin{cases} \dot{x}(\Delta) &= -\Delta y(\Delta) - \Gamma x(\Delta) - k\bar{x}z(\Delta) \\ \dot{y}(\Delta) &= \Delta x(\Delta) - \Gamma y(\Delta) - uz(\Delta) - k\bar{y}z(\Delta) \\ \dot{z}(\Delta) &= \gamma(1 - z(\Delta)) + uy(\Delta) - k(\bar{x}x(\Delta) + \bar{y}y(\Delta)) \end{cases}, \tag{3.55}$$

où les composantes (x, y, z) du moment magnétique dépendent de la position spatiale, *i.e.* du detuning Δ. $(\bar{x}, \bar{y}, \bar{z})$ désignent les valeurs moyennes des composantes des moments magnétiques sur l'ensemble de l'échantillon. On suppose que les paramètres dissipatifs γ et Γ ainsi que le paramètre non-linéaire k sont constants sur l'ensemble de l'échantillon. L'interaction non-linéaire est à présent du type $x_i\overline{x_j}$. Cette forme se déduit simplement. En effet, l'ensemble des moments magnétiques $\bar{x}$ va induire un

courant dans la bobine de mesure, ce courant va à son tour induire un champ magnétique qui va agir sur les moments magnétiques microscopiques. Cela signifie que l'ensemble des spins agissent par ce processus sur le moment magnétique considéré $\overrightarrow{x}$. Pour pouvoir traiter le problème numériquement, une solution simple consiste à discrétiser et tronquer l'intervalle de définition de $\Delta \in [-\infty, \infty]$. On a alors $\Delta = \{\Delta_i\}$ avec $i = \{-n, -n+1, ..., n-1, n\}$ et n entier. Donc numériquement, la dynamique de l'ensemble inhomogène est discrétisé en $(2n+1)$ sous-systèmes de detuning différents couplés au travers de l'interaction non-linéaire et du contrôle qui sont communs. L'aimantation macroscopique devient alors : $\overline{x_i} = \sum_{j=-n}^{n} x_i^j g_j \mathrm{d}(\Delta)$ avec $\mathrm{d}(\Delta)$ la largeur du pas de discrétisation et g_j le poids représentatif de la distribution sur l'intervalle j. Expérimentalement, la largeur de la distribution peut être mesurée et est égale à $w(g(\Delta\omega)) = 2\pi \times 1.1\mathrm{Hz}$. A partir de cette valeur, on déduit T_2^* qui est égal [48] à $(T_2^*)^{-1} = T_2^{-1} + \dfrac{w(g(\Delta\omega))}{2} = 23\mathrm{ms}$.

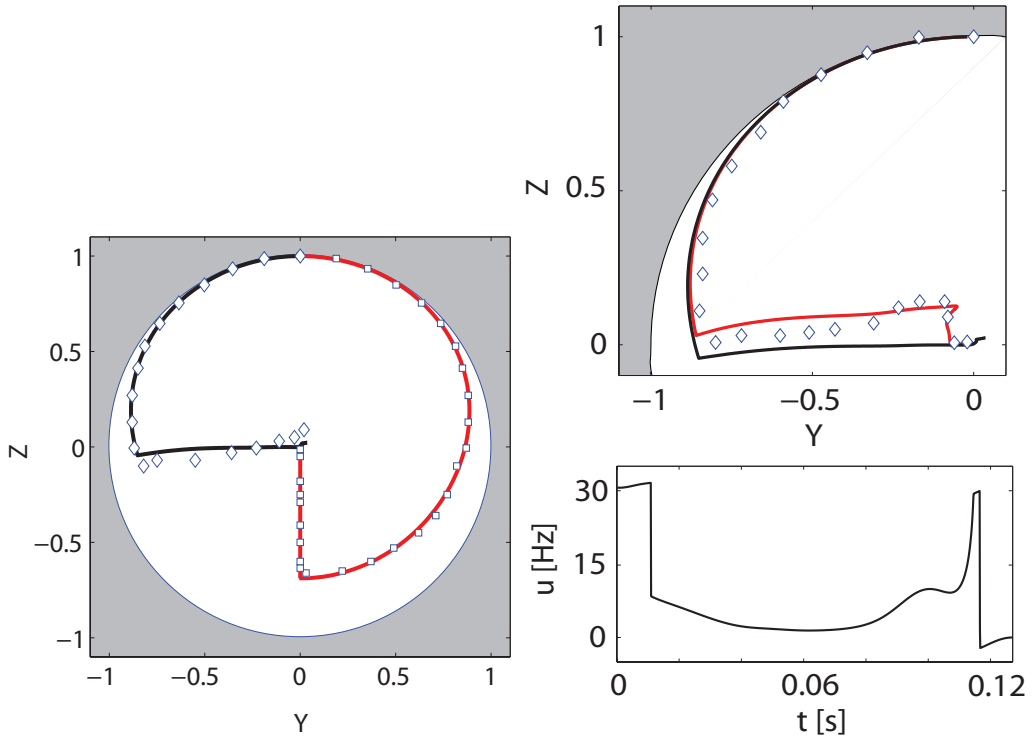


Fig. 3.16: (Gauche) Trajectoires théoriques (en trait plein) et points expérimentaux (losanges blancs) de la solution de saturation en temps minimum à gauche de la boule de Bloch et de la solution d'inversion à droite. Ici la solution optimale est déterminée à partir du modèle macroscopique tenant en compte le terme T_2^*. (Droite) En haut, comparaison des trajectoires optimales du modèle macroscopique en noir et du modèle microscopique en rouge. Les points correspondent aux points expérimentaux (losanges blancs) de la trajectoire microscopique. En bas, évolution du contrôle optimal u permettant le contrôle microscopique de chaque spin.

.

Du point de vue du contrôle géométrique, la taille du système devient beaucoup trop grande pour pouvoir envisager un tir brute-force sans travail préalable. Pour cette raison, un algorithme numérique

itératif est utilisé afin de résoudre le problème, le choix de GRAPE est effectué (cette algorithme est détaillé dans la section (2.5.2)). Pour faciliter la convergence, l'algorithme est initialisé par la séquence de contrôle géométrique obtenue précèdement. Ainsi l'algorithme commence le calcul avec une solution relativement efficace.

Le système étant maintenant décrit non plus par l'aimantation macroscopique mais par l'aimantation microscopique, plusieurs choix sont possibles dans la définition de la cible. On peut définir les coûts à minimiser suivant :

$$\begin{cases} \Phi_a & = (\overline{x})^2 + (\overline{y})^2 + (\overline{z})^2 \\ \Phi_b & = \overline{x^2 + y^2 + z^2} \end{cases} . \tag{3.56}$$

La seconde définition traduit une contrainte beaucoup plus forte que la première. En effet, le premier coût, pour être minimisé, a besoin que seul le signal global s'annule tandis que la seconde définition nécessite que chaque aimantation microscopique s'annule. Ce coût très contraignant fait qu'il est plus difficile pour l'algorithme de converger. Pour cette raison, dans la suite, on considérera la première définition du coût.

Numériquement, la solution recherchée est constituée de deux contrôles : un selon l'axe x et l'autre selon y. Pourtant un résultat non-intuitif est obtenu. Après optimisation, seul un champ de contrôle est utilisé pour compenser l'inhomogénéité, le second étant nul. On peut supposer que ce résultat est corrélé au choix de la solution initiale pour laquelle un des deux contrôles aussi est nul. Rappelons que dans ce cas, ce résultat est obtenu à partir de la symétrie de révolution du système qui n'est plus vérifiée si les detunings sont pris en compte. De plus, la forme de ce champ reste simple et proche de la solution originale (figure (3.16) en bas à droite). La trajectoire passe au dessus de la singulière horizontale et ensuite l'aimantation microscopique diminue selon une trajectoire verticale de haut en bas pour rejoindre approximativement la ligne $z = 0$. Ensuite la trajectoire suit cette ligne pour aller jusqu'au centre de la boule de Bloch. Il faut remarquer qu'en temps normal, la dynamique montre que selon l'axe z, la dissipation force un retour à l'équilibre qui ne peut pas être compensé par le contrôle. Or, pour aller au centre de la boule de Bloch, l'aimantation suit une trajectoire descendante, c'est-à-dire qu'elle se déplace dans le sens contraire de la dissipation (z diminue). Ceci est possible uniquement grâce à la description microscopique du signal global. Numériquement, la solution correspondant au coût Φ_a en initialisant l'algorithme par un champ faible de forme aléatoire s'approche du centre de la boule à 1×10^{-9} près. Pour comparaison, la solution géométrique à l'aide des méthodes de tir permet d'atteindre des précisions de l'ordre de 1×10^{-15}. A l'aide de ce modèle, il est également possible de trouver des solutions de saturation plus rapides que le temps minimum. Ceci provient du fait que la contrainte Φ_a n'exige pas une saturation individuelle des spins mais collective. Par exemple, pour

une optimisation basée sur un temps égal à 80% du temps minimum, on trouve $\Phi_a = 1.1 \times 10^{-8}$. En partant de la solution géométrique, il a seulement été possible, dans ce cas, de s'approcher à 0.28 de la cible. Sur la figure (3.16), on peut également observer les points expérimentaux correspondant à la solution GRAPE obtenue à partir de la solution géométrique. On constate que cette solution fonctionne parfaitement et permet de saturer l'aimantation à la fin du contrôle. L'accord théorie/expérience est une nouvelle fois très bon avec une précision de l'ordre de quelques pourcents.

Les expériences ont permis de montrer qu'il était possible de prendre en compte la non-linéarité du système dans une loi de contrôle pour pouvoir saturer un spin en temps minimum. Cela a également mis en lumière le fait que l'inhomogénéité est un problème très important qui doit être pris en compte dans le modèle.

3.4.2 Cas $k < 0$ et point fixe triple

Dans ce nouvel exemple, on choisit les paramètres : $\gamma = 0.6$, $\Gamma = 0.8$, $k = -3$, $m = 1$, c'est-à-dire $\epsilon = 0.2$, $\upsilon = -2.92$ et $\epsilon_+ = 0.34$ et $\dfrac{m^2}{3\gamma} = 0.42$. Comme le paramètre k est négatif, il ne s'agit pas d'un problème *a priori* physiquement pertinent car cela signifie que le temps caractéristique T_r associé est négatif. Cependant, il existe des techniques pour modifier le signe de la constante de radiation damping effect qui rendent tout son intérêt à ce cas [49]. On déduit des calculs précédents qu'il y aura trois points fixes libres et six autres points fixes correspondants aux valeurs $\pm m$. De plus, on a $\Gamma \leq \gamma$ donc la singulière horizontale n'appartient pas à la boule de Bloch. Elle se situe dans la région $z > 0$. La synthèse utilisera donc des contrôles bang-bang et éventuellement des contrôles singuliers nuls le long de la singulière verticale.

La synthèse prend la forme représentée sur la figure (3.17). Le bord de l'ensemble accessible est constitué de trajectoires bang-bang et la commutation intervient sur le lieu de colinéarité [3]. Le centre de la boule de Bloch n'est plus accessible.

La synthèse optimale est très riche. On peut observer neuf points fixes, les points bleus correspondent à $m = 1$, les verts à $m = -1$ et les rouges à $m = 0$. On note également la présence d'une ligne de switch en rouge (la ligne rouge prolongeant la verte). Un cut-locus est également présent en bleu et vert. Cette ligne correspond à un lieu où, lorsqu'une trajectoire la traverse, celle-ci cesse d'être optimale. Cela signifie qu'il existe deux trajectoires possibles pour atteindre ce lieu, une trajectoire se terminant par un bang $+m$ et une autre se terminant par un bang $-m$. Ce point est illustré par les deux trajectoires se rejoignant sur la ligne verte. D'un côté, il faut utiliser un contrôle BB avec la

3. Dans [5], il est montré qu'en considérant une borne m sur le champ et en fixant $p^0 = 0$, c'est-à-dire dans le cas anormal, à deux dimensions, toutes trajectoires bang croisant le lieu de colinéarité commutent au moment de l'intersection avec celui-ci.

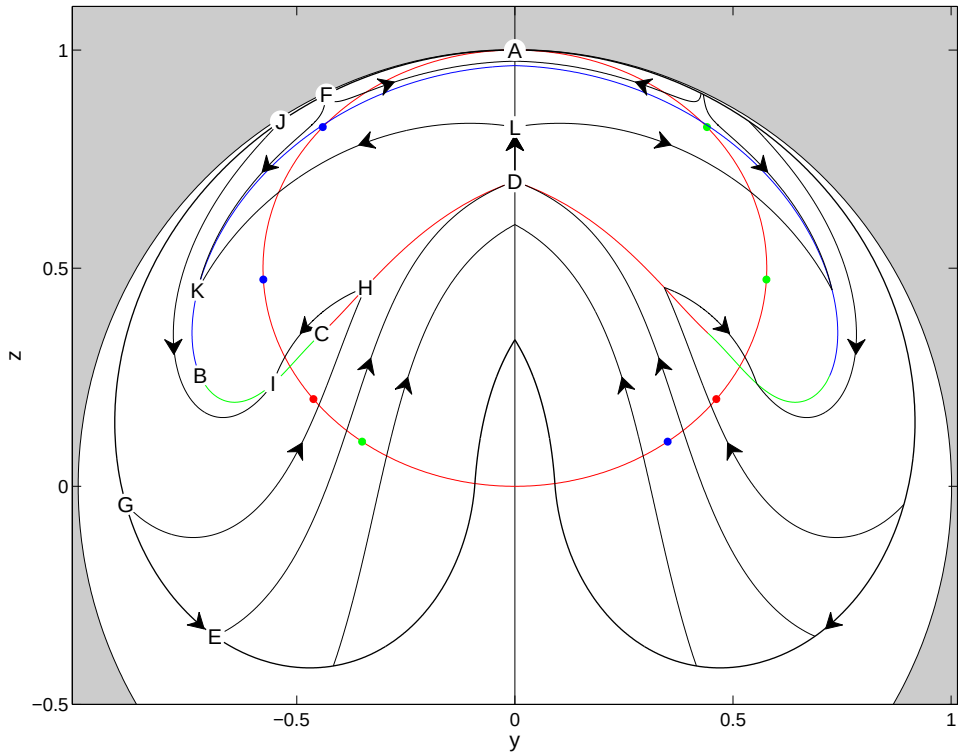


Fig. 3.17: Les points bleus, verts, rouges sont respectivement les points fixes associés à $m = 1$, $m = -1$, $m = 0$. Les lignes vertes et bleues correspondent aux lieux d'overlap ou lieux de Maxwell, c'est-à-dire le lieu où deux trajectoires se rejoignent au même endroit avec le même coût. La ligne rouge prolongeant la ligne verte est la ligne de switch. L'ellipse rouge correspond au lieu de colinéarité.

trajectoire AJI et de l'autre un contrôle BBB avec la trajectoire AGHI. Les trajectoires se rejoignant sur le cut-locus bleu sont du type BB d'un côté avec la trajectoire AFK et BBSB de l'autre côté avec la trajectoire AEDLK. S correspond à un arc singulier vertical avec $u = 0$. La construction de la synthèse n'étant pas aisée, notamment la localisation de la ligne de cut-locus, le détail des fonctions de tir à utiliser est donné en annexe (8.1). De plus, l'analyse pour construire cette synthèse est elle-même complexe. Il y a en effet beaucoup de trajectoires à éliminer par analyse numérique et par des raisonnements de continuité. Pour cette raison, nous ne détaillerons pas dans ce manuscrit la construction amenant à ces structures mais seulement la localisation des différentes composantes.

On peut tout de même commenter la forme de la synthèse. Le premier point marquant est le fait que les nouveaux points fixes peuvent être hyperboliques, c'est-à-dire qu'il repousse l'aimantation. C'est ce que l'on constate au niveau du point fixe bleu proche de F. Deux trajectoires BB arrivent près de lui et on constate que l'une est repoussée vers la gauche tandis que la seconde est repoussée vers la droite. La synthèse est également riche en structure de contrôle. On retrouve des structures BB, par exemple les trajectoires AFK et AJI mais aussi toutes les trajectoires, qui partant de A, commutent après le point E. Il y a des trajectoires BBB, ce sont les trajectoires du type AGHI, le troisième bang apparaît en croisant la ligne de commutation en rouge. La dernière catégorie de trajectoire est la BBSB comme par exemple AEDLK. Il y a un arc singulier entre D et L. Il faut remarquer que dans cette synthèse l'utilisation de la singulière est obligatoire. En effet, si on tente de construire la synthèse sans la considérer, on constate alors qu'une partie de la zone entourée par les lignes de cut-locus et de commutation n'est pas accessible. Des études préliminaires en collaboration avec le groupe de Steffen Glaser sont en cours pour essayer d'implémenter expérimentalement un cas similaire.

3.5 Optimisation du contraste en IRM

3.5.1 Introduction

En imagerie par résonance magnétique nucléaire, l'objectif étant de réaliser des diagnostics médicaux, il est important que les images produites soient de très bonne qualité, notamment en terme de résolution, de bruit et de contraste. Dans la présentation du principe de l'IRM (voir section (3.4)), on comprend que l'amélioration de la résolution est possible à partir de l'utilisation de gradients de champs magnétiques plus intenses, c'est-à-dire avec une variation spatiale de champ magnétique plus importante. La diminution du bruit est possible en améliorant le rapport signal sur bruit. Ce paramètre peut être amélioré en augmentant le nombre de mesures et donc le temps de capture de l'image. Le contraste peut, quant-à-lui, être amélioré de trois façons différentes.

La première méthode consiste à augmenter artificiellement le contraste à l'aide de méthodes de traitement numérique. Cette technique a cependant ses limites car elle peut, par exemple, amplifier un artefact lié à la mesure. Il est de toute façon important d'avoir la meilleure image possible avant tout traitement numérique. Il faut récupérer le maximum d'informations et de la meilleur qualité possible lors de la mesure car les méthodes numériques ne peuvent pas créer l'information du système à imager, elles ne peuvent que l'amplifier. Les deux méthodes suivantes permettent d'obtenir des images de bonnes qualités directement lors de l'acquisition.

La deuxième méthode est une augmentation chimique du contraste par l'ajout d'agent contrastant. Ces agents sont des molécules ayant un grand nombre d'atomes et un centre métallique. Ils sont injectés directement dans le patient. Leur rôle est de modifier la valeur des paramètres dissipatifs T_1 et T_2 de l'organe ou du milieu où ils vont se placer. Cela permet ensuite de rendre des solutions comme la solution d'inversion recovery plus efficaces. Seulement ceux-ci peuvent provoquer des réactions allergiques sur certains patients et dans tous les cas, ces produits étant en général toxiques, il convient d'en limiter l'usage.

Une troisième solution consiste à améliorer le contraste physiquement en utilisant une solution du contrôle optimal. Il s'agit d'une méthode complémentaire aux deux précédentes où l'on optimise le contraste pour un ensemble donné de paramètres de relaxation T_1 et T_2. C'est cette méthode bien évidemment que l'on va traiter dans la suite de ce chapitre.

3.5.2 Contrôle géométrique du contraste

Pour traiter le problème de contraste, nous allons dans une première approche considérer un modèle simplifié constitué de deux systèmes de nature différente. Ces systèmes seront décrits par des paramètres dissipatifs différents mais ils seront contrôlés par le même champ magnétique. Ces systèmes sont gouvernés par les équations de Bloch suivantes :

$$\left\{\begin{array}{ll} \dot{M}_x^i & = -\dfrac{1}{T_2^i}M_y^i + u_y(t)M_z^i \\ \dot{M}_y^i & = -\dfrac{1}{T_2^i}M_x^i - u_x(t)M_z^i \\ \dot{M}_z^i & = \dfrac{1}{T_1^i}(M_0^i - M_z^i) - u_y(t)M_x^i + u_x(t)M_y^i \end{array}\right. , \tag{3.57}$$

où on a introduit l'exposant i qui permet d'étiqueter le spin considéré. De la même façon, on introduit l'équation de Bloch normalisée et indexée par i :

$$\begin{cases} \dot{x}^i &= -\Gamma^i x^i + u_y(t) z^i \\ \dot{y}^i &= -\Gamma^i y^i - u_x(t) z^i \\ \dot{z}^i &= \gamma^i (1 - z^i) - u_y(t) z^i + u_x(t) y^i \end{cases} . \tag{3.58}$$

La séquence de contrôle de référence qui sera utilisée pour pouvoir comparer les résultats obtenus sera une nouvelle fois la séquence d'inversion recouvrement mais également la solution de saturation en temps minimum. Nous allons considérer le problème de contraste suivant qui consiste à saturer une espèce chimique (annuler son moment magnétique) tout en maximisant le module du moment magnétique de la seconde et le tout en considérant une borne m sur le contrôle. Le problème ne comporte pas de contrainte dépendante du temps mais seulement une contrainte terminale, il s'agit donc d'un problème de Mayer.

On note les coordonnées de chacun des deux spins $q_i = (y_i, z_i)$ et $q = q_1 \oplus q_2 = (y_1, z_1, y_2, z_2)$. La dynamique du système est alors notée $\dot{q} = f(q, u)$. Elle peut être décomposée comme $\dot{q} = f_1(q_1, u) \oplus f_2(q_2, u)$ avec $\dot{q}_i = f_i(q_i, u)$, la dynamique individuelle de chacun des spins. Tout comme pour le problème de la saturation en temps minimum, on considère un unique champ résonant avec la fréquence de transition des deux spins, qui sont supposés de même fréquence. Du fait de la symétrie de révolution, aucune généralité n'est perdue dans cette hypothèse. La dynamique de chaque spin s'écrit alors : $\dot{q}_i = F_0^i + uF_1^i$ et on définit les champs de vecteurs suivant $F_0 = F_0^1 \oplus F_0^2$ et $F_1 = F_1^1 \oplus F_1^2$. Les champs de vecteurs de la dynamique de chaque spin s'écrivent $F_0^i = (-\Gamma_i y_i, \gamma_i(1 - z_i))$ et $F_1^i = (-z_i, y_i)$. La formulation du problème est alors

$$\begin{cases} \dot{q} = f(q, u) \\ |u| \leq m \\ q_1(0) = q_2(0) = (0, 1) \\ q_1(t_f) = (0, 0) \\ g(q) = -|q_2|^2 = -x_2^2 - y_2^2 \end{cases} , \tag{3.59}$$

où $g(q)$ est la condition terminale à maximiser. L'Hamiltonien de Pontryagin s'écrit alors : $H = pf(q, u)$ avec $p = p_1 \oplus p_2 = (p_{y_1}, p_{z_1}, p_{y_2}, p_{z_2})$. Les conditions de transversalité du PMP mènent à la condition [4] :

4. Il faut remarquer qu'ici on a choisi le coût terminal $g(q) = -|q_2|^2$ car en choisissant l'expression standard du contraste, c'est-à-dire $C = \dfrac{|q_1| - |q_2|}{|q_1| + |q_2|}$, en imposant de saturer q_1, on vérifierait $C = 1$ pour tout q_2. Pour trouver la valeur optimale de q_2, on a donc choisi le coût $g(q) = -|q_2|^2$.

$p_2 = p^0 \nabla_q q(q) = q_2$ avec la normalisation standard $p^0 = -1/2$. En considérant que le temps de contrôle est libre, on a alors la condition supplémentaire $H = 0$. L'expression du problème dans l'espace des phases (q, p) est alors :

$$\begin{cases} \dot{q} = f(q, u) \\ |u| \leq m \\ q_1(0) = q_2(0) = (0, 1) \\ q_1(t_f) = (0, 0) \\ p_2(t_f) = q_2(t_f) \\ H = 0 \end{cases} . \tag{3.60}$$

La fonction de commutation s'écrit alors :

$$\Phi = pF_1 = p_1 F_1^1 + p_2 F_1^2. \tag{3.61}$$

Sa dérivée est donnée par l'expression suivante :

$$\dot{\Phi} = p\left[F_0, F_1\right] = p_1 \left[F_0^1, F_1^1\right] + p_2 \left[F_0^2, F_1^2\right]. \tag{3.62}$$

La dérivée seconde de Φ s'écrit :

$$\ddot{\Phi} = \left[F_0, \left[F_0, F_1\right]\right] + u_s \left[F_1, \left[F_0, F_1\right]\right]. \tag{3.63}$$

En temps libre, on doit vérifier $H = pF_0 + pF_1 = 0$. Or sur le lieu singulier, on a $\Phi = pF_1 = 0$. On doit donc vérifier $pF_0 = 0$. Il faut également vérifier les équations $\Phi = \dot{\Phi} = \ddot{\Phi} = \ldots = 0$. Pour récapituler, le vecteur adjoint doit être orthogonal aux champs de vecteurs suivant :

$$\begin{cases} p \perp F_0 \\ p \perp F_1 \\ p \perp \left[F_0, F_1\right] \\ p \perp \left[F_0, \left[F_0, F_1\right]\right] + u_s \left[F_1, \left[F_0, F_1\right]\right] \end{cases} . \tag{3.64}$$

Le lieu singulier peut alors être défini par $\det\left(F_0, F_1, \left[F_0, F_1\right], \left[F_0, \left[F_0, F_1\right]\right] + u_s \left[F_1, \left[F_0, F_1\right]\right]\right)$=0. Le champ singulier devient alors feedback et ne dépend plus que des coordonnées q du système. Son expression est :

$$u_s = -\frac{\det\left(F_0, F_1, \left[F_0, F_1\right], \left[F_0, \left[F_0, F_1\right]\right]\right)}{\det\left(F_0, F_1, \left[F_0, F_1\right], \left[F_1, \left[F_0, F_1\right]\right]\right)} \tag{3.65}$$

Ceci n'est vrai que dans le cas où le temps de contrôle est libre, ce qui introduit une contrainte supplémentaire sur la valeur de l'Hamiltonien.

Le contrôle ne peut pas débuter par un arc singulier, en effet le point $q(0)$ est un point fixe de la dynamique engendrée par l'Hamiltonien singulier avec $u_s(q(0)) = 0$. On doit donc obligatoirement utiliser un premier arc bang pour sortir de ce cas pathologique. En considérant uniquement un bang, on ne peut pas contrôler la dissipation radiale, il est seulement possible d'effectuer des rotations dans la boule de Bloch. C'est la raison pour laquelle il est raisonnable d'envisager également la présence d'un arc singulier afin de garder une forme de contrôle de la vitesse de dissipation radiale par analogie avec le cas de la saturation en temps minimum.

3.5.3 Résultat numérique du problème de contraste

Pour pouvoir appuyer les calculs numériques, on choisit quatre exemples tests représentatifs des systèmes que l'on peut retrouver en imagerie médicale. Le premier est le couple eau/liquide cérébrospinal pour étudier le cerveau. Le second est le couple sang oxygéné/désoxygéné. Il permet de différentier le système artériel du système veineux. Le troisième couple est constitué de la matière grise cérébrale et de la matière blanche cérébrale encore une fois pour l'étude du cerveau. Le dernier cas est celui de l'eau et de la graisse, par exemple, pour détecter des dépôts de graisse anormaux dans le corps du patient.

Dans un premier temps on compare la solution IR (inversion recouvrement déjà utilisé dans le cas de la saturation en temps minimum dans la section (3.3)) à la solution BS constituée d'un arc bang et d'un arc singulier. Les résultats sont reportés dans le tableau (3.1). Dans ce tableau, on constate

Milieu	T1(ms)	T2(ms)	Contraste IR	Contraste Sat.	Contraste (BS)
Eau	2500	2500	0.1682	0.1682(IR)	0.5354
Liquide cérébrospinal	2000	300	0.1588	0.5790	0.5799(Sat)
Sang désoxygéné	1350	50	0.0570	0.3957	0.4665
Sang oxygéné	1350	200	0.0539	0.1853	0.4731
Matière grise cérébrale	920	100	0.1146	0.0495	0.0911
Matière blanche cérébrale	780	90	0.1087	0.0514	0.1020
Eau	2500	2500	0.9997	0.9997(IR)	0.9997
Graisse	200	100	0.8950	0.9003	0.8997(Sat)

Tab. 3.1: Tableau de comparaison du contraste obtenu pour huit problèmes différents (quatre couples de paramètres dissipatifs et saturation de la première espèce puis de la seconde) ainsi que pour les solutions d'inversion, les solutions de saturation en temps minimum et la structure bang singulière. La notation entre parenthèse signifie que les calculs numériques ont permis de se rapprocher de la structure notée entre parenthèse.

que le contraste produit par la solution intuitive d'inversion (IR) est proportionnelle à la différence de dissipation longitudinale, ce qui est conforme au comportement attendu de l'équation de Bloch. Si la différence relative entre les paramètres dissipatifs longitudinaux T_1^1 et T_1^2 est grande, cela signifie que selon la direction z, pendant qu'un spin se déplacera rapidement, le second se déplacera lentement. Cela permet d'aboutir à un contraste élevé. Dans la colonne correspondant à la solution de saturation, on retrouve que si $T_1 = T_2$ alors la solution d'inversion est la solution optimale du problème de saturation en temps minimum.

Si le paramètre dissipatif longitudinal du spin à saturer T_1^1 est très supérieur au paramètre dissipatif transverse T_2^1 et que l'écart relatif entre les paramètres dissipatifs transverses T_2^1 et T_2^2 est grand, alors la solution de saturation sera efficace. Cela signifie que la première partie du pulse va permettre de basculer les deux moments magnétiques autour[5] du point de coordonnées $(1, 0)$ puis l'écart entre les paramètres dissipatifs transverses implique qu'ils s'éloigneront rapidement l'un de l'autre en suivant la singulière horizontale. On peut résumer les deux points ci-dessus :

- $|T_1^1 - T_2^1|$ petit et $\left|\dfrac{T_1^1 - T_1^2}{T_1^1}\right|$ grand alors la solution IR permettra d'obtenir un contraste important
- $T_1^1 \gg T_1^2$ grand et $\left|\dfrac{T_2^2 - T_2^1}{T_2^1}\right|$ grand alors la solution de saturation permettra d'obtenir un contraste important

A partir de ces constats, on comprend que l'amélioration du contraste pour le système matière grise/matière blanche est difficile à obtenir. Dans le cas eau/graisse, l'écart relatif entre les paramètres de dissipation longitudinale est tel que la solution d'inversion autorise un contraste tellement grand qu'il devient difficile de l'améliorer.

Cependant dans les quatre premiers cas du tableau, la solution BS présente une amélioration du contraste de quelques pourcents à un facteur 10 (en comparant la solution d'inversion recouvrement à la solution BS) dans le cas de la maximisation du contraste du couple sang oxygéné/désoxygéné. Les trajectoires ainsi que les champs de contrôles obtenus sont visible sur la figure (3.18).

La solution BS donne des résultats encourageants. Il est intéressant alors de considérer des solutions de type BSBS. En fait, des tests de points conjugués permettent de montrer que la singulière perd l'optimalité locale. Il faut remarquer que la solution de saturation d'un spin en temps minimum est un cas limite du problème de contraste. En effet, imaginons que l'on ait une solution du problème de contraste en un temps t_f, on peut appliquer une méthode d'homotopie (voir section (2.4.4)) sur ce temps de contrôle en direction de la limite temps minimum. Il n'est pas possible de saturer le spin en dessous de la limite physique établie précédemment. Néanmoins, la solution de saturation d'un spin

5. Pour rappel, la position de la ligne singulière pour un spin, c'est-à-dire le lieu où la dissipation radiale est la plus forte est $z_0 = -\dfrac{T_2}{2(T_1 - T_2)}$. Alors si $T_1 \gg T_2$, la position de la singulière tend vers $z_0 \approx 0$.

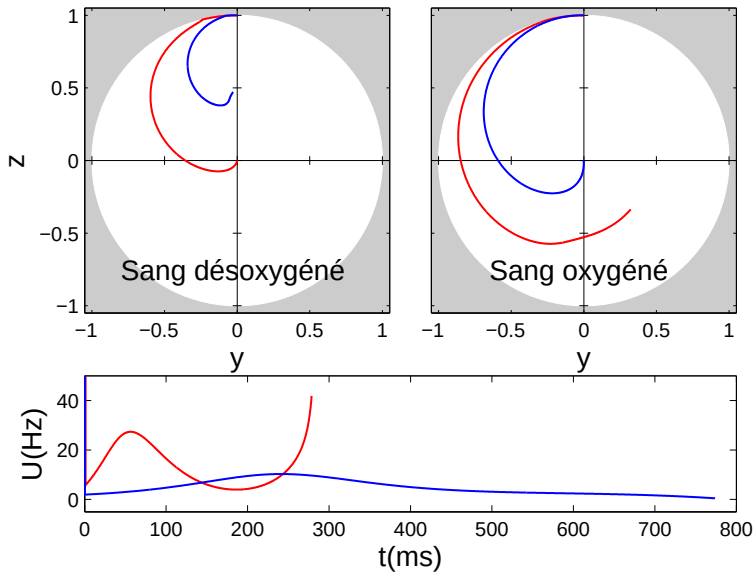


Fig. 3.18: (Haut) Trajectoires du moment magnétique du sang oxygéné et du sang désoxygéné. (Bas) champs de contrôle associés. En bleu, solution saturant le sang oxygéné et en rouge, solution saturant le sang désoxygéné.

en temps minimum n'est pas solution du problème de contraste mais juste une limite. Pour retrouver la solution de saturation en temps minimum, on se rend compte que l'on doit vérifier $p_2(t) = (0, 0)$. Ceci est contradictoire avec les conditions de transversalité qui impliquent que $x_2(t_f) = p_2(t_f)$.

Pour être sur le lieu singulier, il faut vérifier : $\Phi = pF_1 = p_1F_1^1 + p_2F_1^2 = 0$ et $\dot{\Phi} = p\left[F_0, F_1\right] = p_1\left[F_0^1, F_1^1\right] + p_2\left[F_0^2, F_1^2\right]$. Or le lieu singulier associé au problème de saturation vérifie $p_1F_1^1 = 0$ et $p_1\left[F_0^1, F_1^1\right]$ et est défini sur le lieu $F_1 // \left[F_0^1, F_1^1\right]$. Pour vérifier $\Phi = \dot{\Phi} = 0$ et $p_1F_1^1 = p_1\left[F_0^1, F_1^1\right]$ simultanément sur le lieu singulier du problème de saturation en temps minimum, il faudrait que $F_1^2 // \left[F_0^2, F_1^2\right]$ et $F_1^1 // \left[F_0^1, F_1^1\right]$ or ceci n'est possible que si les paramètres dissipatifs des deux systèmes sont égaux. On déduit alors que la seule solution est $p_2(t) = (0, 0)$.

La solution de saturation n'est alors qu'une limite du problème de contraste mais pas une solution en soi.

3.5.4 Construction de la solution BSBS

Le problème de la recherche d'une solution BSBS est intéressant du fait de la présence du pont introduit dans la section sur la saturation d'un spin en temps minimum (section (3.3)). En effet, le second bang a un rôle très important qui est celui d'assurer la continuité des conditions pour quitter la singulière et y retourner (voir figure 3.19). En appelant t_1 le point où on quitte la singulière et t_2 le point où la trajectoire bang retourne sur la singulière, il faut vérifier : $\Phi(t_1) = \Phi(t_2) = \dot{\Phi}(t_1) = \dot{\Phi}(t_2) = 0$.

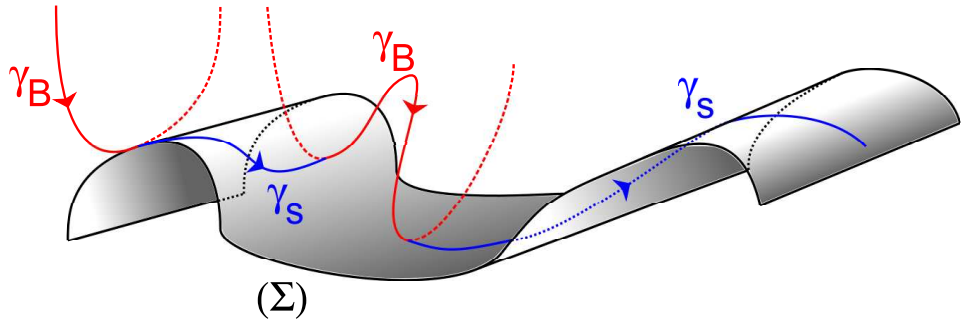


Fig. 3.19: Schéma représentant une trajectoire BSBS dans l'espace des phases. Σ correspond à la surface singulière et γ_B et γ_S correspondent respectivement à une trajectoire bang et à une trajectoire singulière. Sur cette figure on peut voir l'interprétation de $\Phi = \dot{\Phi} = 0$. Elle correspond au fait que pour qu'une trajectoire bang entre sur la surface singulière, la trajectoire doit arriver tangentiellement à la surface dans l'espace des phases.

Pour commencer la résolution de ce problème, on considère d'abord le cas du temps libre. L'écriture de la fonction de tir pour ce problème est délicate. En effet, on doit vérifier quatre conditions terminales ainsi que quatre conditions intermédiaires. En effectuant un tir concaténant les quatre structures supposées, alors les conditions intermédiaires ne seront pas respectées dans l'algorithme de recherche de zéro de la fonction de tir, c'est-à-dire que pendant la résolution, la solution empruntée ne sera pas toujours une extrémale du problème. Pour pallier à ce problème, il faut traiter le problème comme un problème dans lequel on veut connecter deux trajectoires, l'une se propageant dans le sens normal du temps en partant des conditions initiales et une seconde se propageant à contre temps à partir des conditions finales[6]. La fonction de tir utilisée est synthétisée dans l'annexe (8.3.1). A l'aide de cette fonction de tir on trouve une solution BSBS saturant le liquide cérébrospinal et maximisant le moment magnétique de l'eau. Les trajectoires et le contrôle sont présentés sur la figure (3.20).

L'étape suivante est le traitement du problème à temps fixe. Pour cela, on effectue une continuation sur le paramètre temps. Ainsi, on peut observer aisément si le contraste est optimal et s'il est possible de l'améliorer pour un temps différent, on constate que le contraste est meilleur pour un temps grand. On conjecture pour le cas du sang que le maximum est obtenu pour un temps infini avec une limite autour de 0.74. Le fait que le temps devienne infini est aisément compréhensible car le premier bang sert uniquement à quitter le point d'équilibre instable de la dynamique singulière. Si la durée du premier bang tend vers zéro alors après cette première impulsion, le système sera très proche de l'équilibre avec une valeur de u_s voisine de zéro et il faut un temps très grand pour quitter le voisinage de cet équilibre.

6. Le code Hampath a été amélioré pour traiter ce problème. Notamment, il gère les problèmes de tirs multiples, c'est-à-dire que la structure du problème en n morceaux et le problème de tir est alors élargi car il faut trouver une solution qui permette de relier tous les arcs bangs et singuliers entre eux en vérifiant les conditions de continuité de (p, q) mais aussi de Φ et $\dot{\Phi}$.

Pour finir avec le traitement numérique de ce problème, on peut appliquer la méthode de continuation aux paramètres dissipatifs. De cette façon, on peut appliquer la solution BSBS à d'autres systèmes. Cependant, il n'a pas été possible à l'heure actuelle de relier les quatre problèmes entre eux pour aboutir à la solution d'un autre des systèmes considérés.

A ce stade il est important de préciser que beaucoup reste à faire. En effet il faudrait arriver à conjecturer une classification des solutions du problème en fonction des valeurs des paramètres dissipatifs. Il serait important également de comprendre le rôle exact des ponts pour pouvoir éventuellement imaginer une structure de contrôle n(BS), c'est-à-dire une concaténation de n structure (BS).

Ceci conclut l'état actuel de l'aspect théorique de l'optimisation du contraste en IRM.

3.5.5 Implémentation expérimentale

Pour valider ces premiers résultats, une série d'expériences a été menée par l'équipe du professeur Steffen Glaser à Munich. Pour montrer l'efficacité des résultats, la solution du sang oxygéné et désoxygéné est considérée dans une expérience de RMN. L'échantillon est constitué d'un petit tube contenant le sang oxygéné qui est plongé dans un tube ayant un diamètre plus large dans lequel se trouve le sang désoxygéné. En réalité, dans le cadre de la réalisation expérimentale, lorsque l'on parle de sang oxygéné et désoxygéné, nous faisons référence (pour des raisons pratiques) à une solution ayant une composition chimique telle que ses paramètres dissipatifs soient identiques à ceux du sang.

Pour une implémentation réelle en imagerie ou en spectroscopie, il faut se rappeler que les solutions d'optimisation du contraste sont des solutions de préparation de l'échantillon. Ensuite, pour effectuer la mesure, il faut appliquer une séquence hard-pulse afin de basculer l'aimantation dans le plan transverse au champ statique pour effectuer la mesure en dynamique libre (voir section (3.2.3)).

La figure (3.21) montre qu'expérimentalement la solution obtenue théoriquement est efficace, les points expérimentaux sont proches des deux trajectoires théoriques. Cette première expérience consiste simplement en une mesure de la trajectoire pour vérifier l'accord théorie-expérience. Elle est réalisée dans un appareil de RMN sans question d'imagerie pour l'instant. L'objectif étant d'optimiser le contraste en IRM, il convient de tester la solution dans un cas réaliste d'imagerie comme expliqué précédemment. Dans ce cas, la manipulation est répétée autant de fois qu'il y a de lignes dans le plan de Fourier (voir section (3.2.4)). On a constaté que l'effet de l'inhomogénéité du champ statique et du champ de contrôle avait un rôle très néfaste dans le cas non-linéaire (voir section 3.4). Le même effet néfaste est présent dans notre problème d'imagerie. Sur la figure (3.22), on observe à gauche l'effet d'une séquence hard-pulse de 90° sans préparation préalable, le contraste entre l'échantillon intérieur (le sang oxygéné) et l'échantillon extérieur (le sang désoxygéné) est faible. A droite, on observe l'effet de

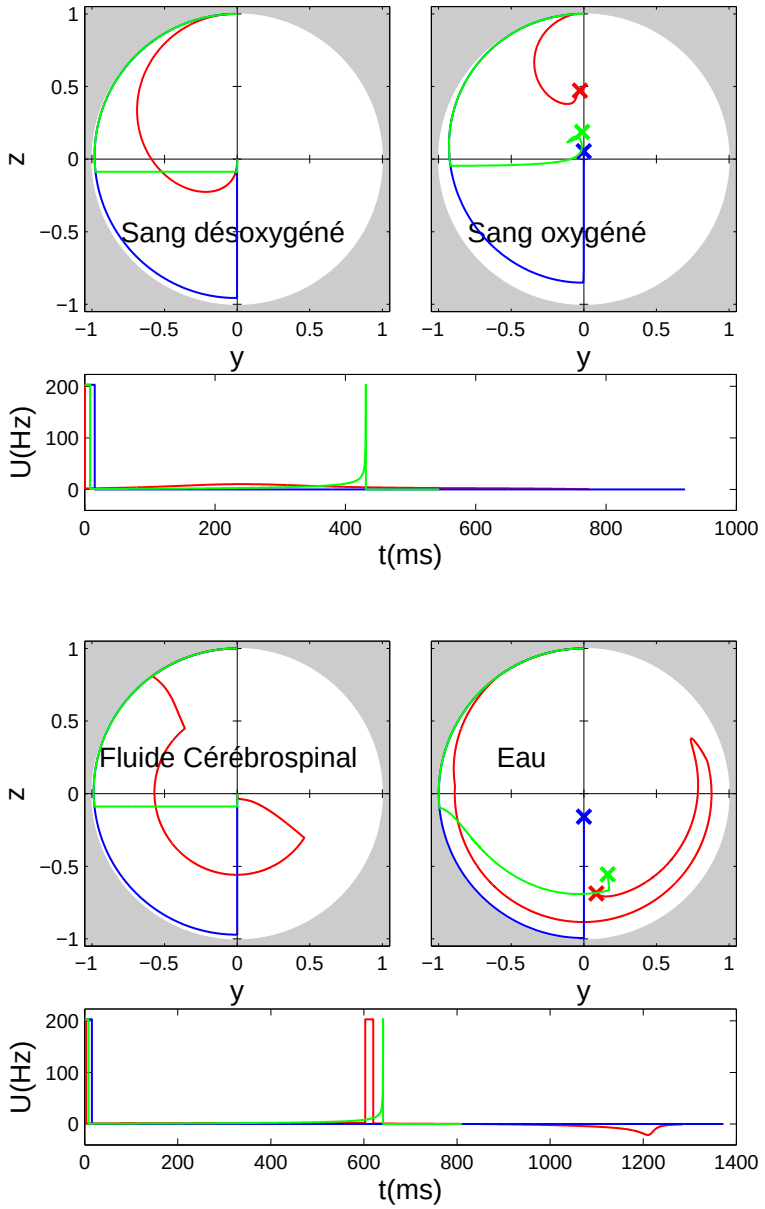


Fig. 3.20: Comparaison des solutions d'inversion (en bleu) de saturation en temps minimum (en vert) et d'optimisation du contraste (en rouge). (Haut) Cas de la saturation du sang désoxygéné, ici la solution du contraste a une structure BS. (Bas) Cas de la saturation du fluide cérébrospinal, dans ce cas la solution a une structure BSBS.

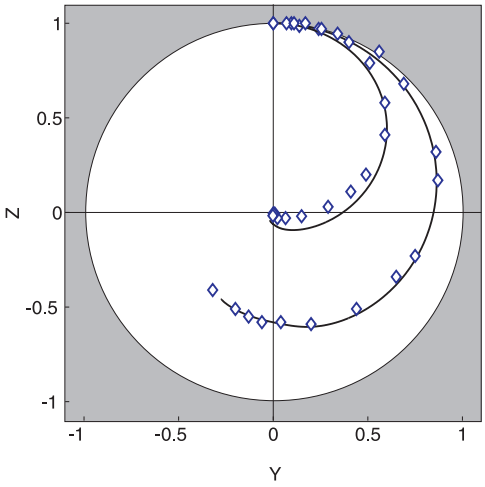


Fig. 3.21: Trajectoire théorique (ligne pleine) et points expérimentaux (losange blanc) de maximisation du contraste du sang désoxygéné et oxygéné. La courbe saturée à la fin du contrôle correspond au sang désoxygéné.

la solution optimale. On constate que l'échantillon intérieur apparaît en noir sur l'image (donc saturé) tandis que l'échantillon extérieur lui est gris. Il faut noter que dans le bas de l'anneau extérieur, il y a quelques arcs noirs résiduels, provenant de l'inhomogénéité du champ de contrôle. Ce dernier point fait prendre conscience de l'importance de traiter le problème en tenant compte de l'inhomogénéité. En effet, dans notre image un artéfact de mesure est présent et on pourrait facilement extrapoler celui-ci en imaginant une erreur de diagnostic dans le domaine médical. On comprend donc l'importance de lutter contre ce type d'effet en affinant le modèle. Cet artefact est ici peu visible mais il pourrait être beaucoup plus important dans le cas d'un patient en imagerie médicale.

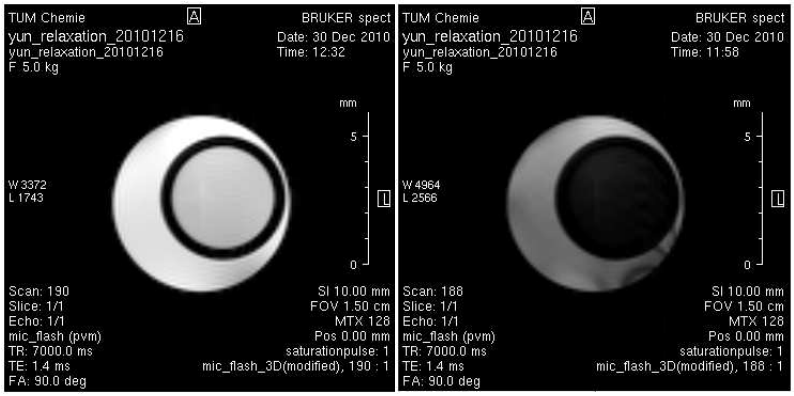


Fig. 3.22: (Gauche) Expérience réalisée avec une séquence hard-pulse de 90° sur le système sang oxygéné/sang désoxygéné. (Droite) Expérience réalisée à l'aide de la séquence optimale amplifiée par un facteur quinze. Remarque : ces images représentent le plan transverse au champ magnétique B_0, c'est-à-dire une coupe transversale de l'échantillon. L'échantillon est constitué de deux tubes dont un petit à l'intérieur d'un plus gros. Ces deux tubes sont alignés dans le sens du champ statique. L'image correspond donc à une coupe transverse de ces tubes et l'anneau noir que l'on peut observer sur ces deux figures correspond à la structure du petit tube, c'est-à-dire le milieu séparant physiquement les deux solutions.

Pour rendre compte de l'effet de l'inhomogénéité dans le système, il faut introduire la distribution de detuning du système et celle de B_1, le champ de contrôle (voir section (3.4)). Ces distributions spatiales peuvent être mesurées. On obtient les résultats présentés sur la figure (3.23). On peut voir la distribution spatiale de l'inhomogénéité du champ statique à gauche de la figure (3.23) et l'inhomogénéité spatiale du champ de contrôle à droite. Pour rappel, l'inhomogénéité du champ de contrôle ne consiste pas en un désaccord à la résonance mais en une augmentation ou diminution de l'amplitude du champ perçu localement par l'échantillon. On constate que l'inhomogénéité du champ statique va jusqu'à une trentaine de Hertz, soit en unité normalisée environ 0.2, ce qui est du même ordre de grandeur que les paramètres dissipatifs Γ et γ. Le detuning va donc commencer à jouer un rôle assez important dans la dynamique. L'inhomogénéité du champ de contrôle est comprise entre $\pm 20\%$. Cet effet est également non négligeable et on comprend mieux pourquoi des arcs sombres apparaissent sur l'anneau extérieur de la figure (3.22) de droite. A cet endroit, le champ de contrôle est moins fort donc l'aimantation bascule d'un angle moins grand que prévu et l'amplitude de l'aimantation transverse est plus faible d'où l'apparition d'un arc sombre.

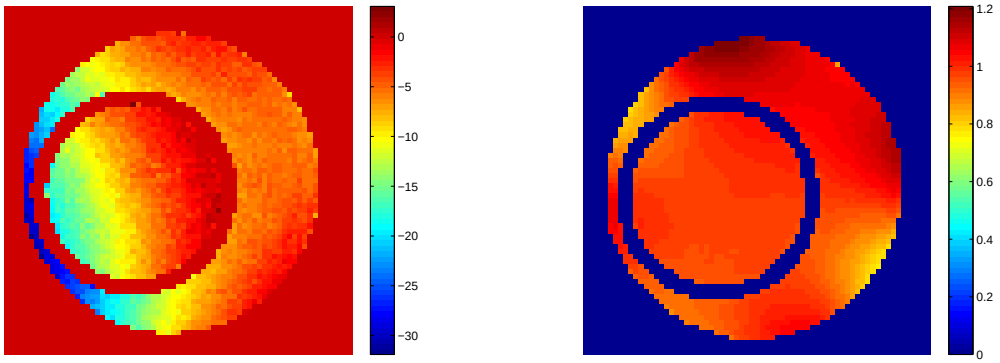


Fig. 3.23: (Gauche) Inhomogénéité spatiale transvere du champ statique B_0 dans un plan transversale à ce champ. L'échelle est en Hz. (Droite) Inhomogénéité spatiale transverse du champ de contrôle. L'échelle est relative à une valeur de référence.

Pour mieux comprendre l'influence des deux types d'inhomogénéités, il est important de tracer la surface représentant l'influence du detuning et du facteur d'échelle du champ sur la valeur du contraste accessible. Cette surface est représentée sur la figure (3.24). On constate alors que pour des variations de plus ou moins cinq pourcents, la valeur du contraste est assez stable mais au-delà, elle diminue assez rapidement. En revanche la robustesse est plutôt élevée en fonction du detuning.

Une méthode pour rendre la solution de contraste robuste envers les inhomogénéité est celle déjà introduite dans la section (3.4.1). Au lieu de calculer la dynamique du couple de spins considéré, on va chercher à optimiser la valeur du contraste pour un ensemble de detuning et de facteurs d'échelle.

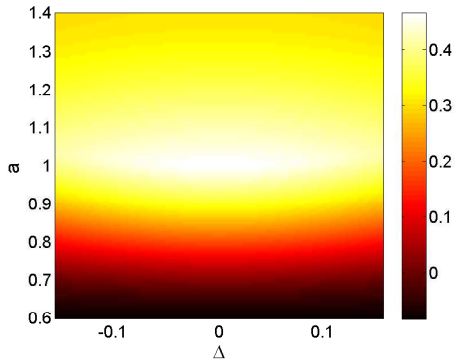


Fig. 3.24: Robustesse de la solution optimale en fonction du detuning Δ et du facteur d'échelle du champ de contrôle a. Pour le jeu de paramètres du système, l'intervalle $\Delta\omega$ associé à Δ correspond à une variation de $[-33, 33]$ Hz. On constate que la solution est assez robuste envers le detuning mais plutôt sensible par rapport à l'amplitude du champ, des variations de moins de cinq pourcents sont autorisées, c'est-à-dire $a \in [-0.05, 0.05]$.

Numériquement, l'algorithme GRAPE a été utilisé (voir section (2.5.2)). L'optimisation est réalisée en utilisant deux champs de contrôle. Deux formes de champ assez complexes sont alors obtenues avec en revanche une très bonne robustesse vis-à-vis des deux types d'inhomogénéités. On ne présente pas la surface obtenue car celle-ci consiste simplement en un plan homogène, *i.e.* la valeur du contraste est la même sur toute la plage de paramètres choisie. Cet ensemble de paramètres est identique à celui utilisé pour tester la robustesse de la solution géométrique obtenue.

3.5.6 Conclusion

Pour conclure, nous rappelons que ce travail constitue une étude préliminaire du problème de contraste. Le prochain objectif sera de terminer l'étude du problème dans le cas sans inhomogénéité et notamment d'arriver à faire une classification des structures des solutions en fonction des paramètres dissipatifs. Ceci permettra d'accéder à un ensemble de solutions tests. Dans un second temps, il faudra compléter le modèle pour décrire l'inhomogénéité des champs statiques et de contrôles afin de pouvoir calculer des solutions numériquement à partir des solutions préalablement établies en ajoutant également un second champ de contrôle et dans un dernier temps arriver à comprendre comment résoudre le problème complet à l'aide de fonction de tir.

Chapitre 4

Contrôle optimal de la rotation moléculaire par champ laser

4.1 Introduction

Le chapitre commencera par un rappel du modèle décrivant la rotation moléculaire ainsi que l'interaction avec le laser. Puis nous développerons une nouvelle technique de contrôle qui tient compte de contraintes spectrales sur le champ laser, ce qui est important dans le cadre du contrôle et des applications expérimentales. Les deux sections suivantes seront consacrées à la définition de nouveaux états de la rotation qui permettent à la molécule d'exhiber de nouveaux comportements notamment l'alignement planaire ou la rotation planaire classique. La stratégie de contrôle obtenue pour délocaliser des molécules a été utilisée expérimentalement à Dijon par le groupe d'O. Faucher.

4.2 Contexte du contrôle moléculaire

Le contrôle des systèmes atomiques et moléculaires est apparu dans les années 80, ce domaine s'est vite diversifié et est devenu très populaire [7, 8]. Le contrôle de la rotation moléculaire a connu un vif engouement aux cours des années 90 avec la découverte de l'alignement de molécules en phase gazeuse à l'aide de champs laser intenses et brefs [12, 50]. Alignement signifie ici que l'axe moléculaire (on considère ici pour simplifier une molécule linéaire) est aligné le long d'une direction fixe du laboratoire qui peut être, par exemple, la direction de polarisation du champ électrique. L'orientation moléculaire se différencie de l'alignement dans le sens où l'on demande à la molécule d'être alignée mais selon un sens donné (voir figure (4.1)). Pour pouvoir produire une orientation moléculaire, on doit considérer une molécule hétéronucléaire, alors qu'une molécule homonucléaire suffit pour produire de l'alignement. Qualitativement cela signifie que l'on doit pouvoir distinguer les deux côtés de la molécule. L'alignement peut être produit sous deux régimes différents : un premier régime, dit soudain [51], car la durée du champ laser est petite devant la période rotationnelle et un second régime, dit adiabatique, où cette durée est grande devant cette période [52, 53].

L'alignement est important du point de vue du contrôle moléculaire car celui-ci permet de fixer la

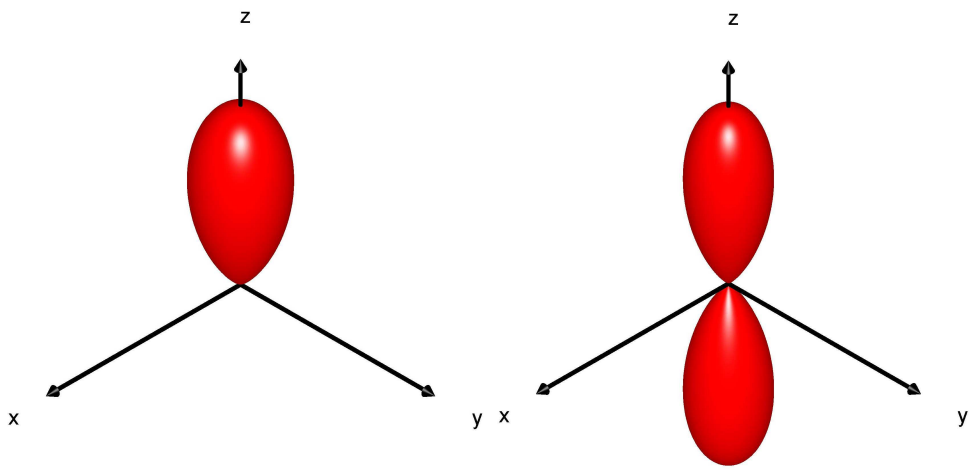


Fig. 4.1: Illustration de l'orientation et de l'alignement moléculaire respectivement à gauche et à droite. Ces figurent représentent les densités de probabilité des molécules orientées et alignées.

molécule par rapport aux axes du laboratoire afin de pouvoir contrôler l'état électronique ou vibrationnel de celle-ci avec une meilleure efficacité. Pour cette raison, il est préférable de produire un alignement en champ libre [1] afin que le système soit aligné mais que les niveaux d'énergie restent inchangés. La première vérification expérimentale de l'alignement post-impulsion a été réalisée par Vrakking [54]. Ensuite de nombreux travaux ont été effectués notamment pour perfectionner les techniques de contrôle et de mesure. En effet, la mesure elle-même de l'alignement moléculaire est primordiale. Une technique couramment utilisée est l'explosion coulombienne. Celle-ci consiste à briser la molécule par photodissociation et à mesurer la direction dans laquelle les fragments se dirigent préférentiellement [55]. Il existe d'autres méthodes moins destructives comme la spectroscopie rotationnelle [56] ou bien une technique utilisant le fait qu'un échantillon de molécules alignées est anisotrope et donc biréfringent. Cette méthode consiste à mesurer l'évolution de la biréfringence qui est proportionnelle au degré d'alignement [57]. Elle a été développée à Dijon par le groupe d'O. Faucher. Différentes références sur les méthodes de production et de mesure ainsi que des discussions sur l'analyse de l'alignement sont données dans les revues suivantes [58, 11].

Dans le cadre de l'orientation moléculaire, plusieurs études ont initialement été menées pour orienter les molécules avec un moment dipolaire permanent dans un champ électrique statique [58]. L'orientation de molécules par des processus induisant une orientation moléculaire en champ libre a ensuite été développée. Une première technique simple consiste à utiliser des impulsions dites demi-cycle (half cycle pulse ou HCP). Celles-ci sont caractérisées par le fait qu'elles ne contiennent qu'un demi-cycle optique. Dans ce cas, une interaction avec le moment dipolaire permanent se produit et induit une

1. En champ libre signifie en l'absence de champ électrique.

orientation libre [59, 60]. Cette orientation est possible car la fréquence de ce champ est l'ordre du terahertz, ce qui correspond à l'ordre de grandeur des fréquences rotationnelles. Dans le cas de l'alignement par champ soudain, la largeur typique d'une impulsion sera de l'ordre d'une dizaine de femtosecondes et donc la largeur spectrale sera de l'ordre du terahertz. On en déduit que c'est l'enveloppe de l'impulsion qui permet de contrôler la rotation. Pour revenir à l'orientation, d'autres techniques existent telles que l'orientation à l'aide de champ du type $(\omega, 2\omega)$, c'est-à-dire que le contrôle est composé d'une impulsion laser de fréquence ω et d'une autre de fréquence 2ω. L'orientation se fait alors via l'hyperpolarisabilité de la molécule [61]. Cette technique a été appliquée expérimentalement dans [62, 63]. Dans tous ces exemples, la fréquence de la porteuse est supposée non résonante avec les fréquences des niveaux vibrationnels et électroniques de la molécule, qui ne seront donc pas excités. On pourra admettre avec une bonne approximation que la molécule reste dans son état électronique et vibrationnel fondamental.

4.3 Modèle physique

Avant de décrire les différents résultats obtenus concernant la thématique du contrôle de la rotation moléculaire, il est important de rappeler le modèle physique décrivant la rotation d'une molécule. Il est également important de mentionner les hypothèses simplificatrices utilisées. La première est l'approximation de Born-Oppenheimer. Elle est basée sur le fait que la masse électronique est très inférieure à la masse du noyau. Le ratio des masses est d'environ $m_p/m_e \approx 1800$ sachant que m_p, la masse du proton, est la plus petite masse possible pour un noyau atomique standard (sans se préoccuper des atomes exotiques tels que l'atome d'électron-positron). La faible masse de l'électron signifie que les mouvements des noyaux seront quasi-indépendant des électrons, ceux-ci étant trop légers pour influencer la dynamique des noyaux. Dans cette approximation, le nuage électronique s'adapte instantanément au mouvement des noyaux. L'approximation consiste alors à séparer la dynamique nucléaire de la dynamique électronique et à négliger les couplages entre la dynamique des noyaux et la dynamique électronique. La vibration de la molécule décrit la façon dont les noyaux de la molécule vont se rapprocher ou s'écarter l'un de l'autre. La seconde hypothèse (qui sera considérée dans toute la suite du manuscrit) consiste à négliger ce mouvement de vibration. Cette approximation est justifiée par le fait que les fréquences caractéristiques de la vibration et de la rotation sont très différentes. Ainsi, si le champ de contrôle est constitué de fréquences permettant une excitation rotationnelle, il ne permettra pas d'exciter les modes de vibration du système. On considèrera dans toute la suite du manuscrit que le système se trouve dans l'état fondamental électronique et vibrationnel. Pour une molécule diatomique,

l'ordre de grandeur des fréquences rotationnelles est le terahertz, cela correspond typiquement aux fréquences constituant le spectre de l'enveloppe d'une impulsion gaussienne d'une largeur d'une dizaine de femtoseconde à la picoseconde. Pour comparer, l'ordre de grandeur de la fréquence d'une transition électronique se situe du domaine visible du spectre électromagnétique jusqu'au domaine ultraviolet. Pour la vibration, cela correspond au proche infrarouge jusqu'à l'infrarouge lointain. Grossièrement, un ordre de grandeur sépare les fréquences des transitions électroniques des fréquences de transitions vibrationnelles et un autre ordre de grandeur sépare les fréquences de transitions vibrationnelles des fréquences de transitions rotationnelles. On suppose également que la fréquence optique du champ de contrôle n'est pas résonante avec les fréquences électroniques, vibrationnelles et rotationnelles. En revanche, comme il a été dit précédemment, le spectre de l'enveloppe du champ de contrôle est résonant avec les fréquences rotationnelles. Ces approximations correspondent au cas général décrivant aussi bien les molécules linéaires que les molécules asymétriques en passant par les molécules toupies symétriques et sphériques.

4.3.1 Dynamique libre de la rotation des molécules

Pour pouvoir introduire le modèle décrivant la rotation libre d'une molécule, il convient d'abord d'introduire les différents repères dans lesquels on sera amené à travailler. Le premier est le repère du laboratoire que l'on note (x, y, z), c'est un repère fixe. Le second est le repère moléculaire qui lui est attaché aux axes moléculaires et constitue donc un repère mobile, on le notera (X, Y, Z). Pour pouvoir décrire la position du repère moléculaire dans le repère du laboratoire, on introduit les trois angles d'Euler (θ, φ, χ). Le premier angle est l'angle de nutation décrivant l'écart entre les axes z et Z, le second est l'angle de précession décrivant l'écart entre les axes x et X. Ces deux angles repèrent donc la position de l'axe moléculaire Z dans le repère du laboratoire. Le dernier angle est l'angle de rotation propre qui correspond à une rotation de χ du repère moléculaire autour de son axe Z. Cet angle permet de repérer les deux autres axes X et Y dans le repère du laboratoire. A l'aide de ces trois angles, on peut définir une matrice de rotation permettant de passer du repère moléculaire au repère du laboratoire. On note cette matrice $R(\theta, \varphi, \chi)$ et on a :

$$R(\theta,\varphi,\chi) = \begin{pmatrix} \cos\theta\cos\varphi\cos\chi - \sin\varphi\sin\chi & \cos\varphi\sin\chi + \cos\theta\sin\varphi\cos\chi & -\sin\theta\cos\chi \\ -\sin\varphi\cos\chi - \cos\theta\cos\varphi\sin\chi & \cos\varphi\cos\chi - \cos\theta\sin\varphi\sin\chi & \sin\theta\sin\chi \\ \sin\theta\cos\varphi & \sin\theta\sin\varphi & \cos\theta \end{pmatrix}. \quad (4.1)$$

La figure (4.2) décrit le passage du repère du laboratoire au repère moléculaire à l'aide des angles d'Euler. Dans le repère moléculaire, le tenseur d'inertie est diagonal et on note (I_X, I_Y, I_Z) ses valeurs

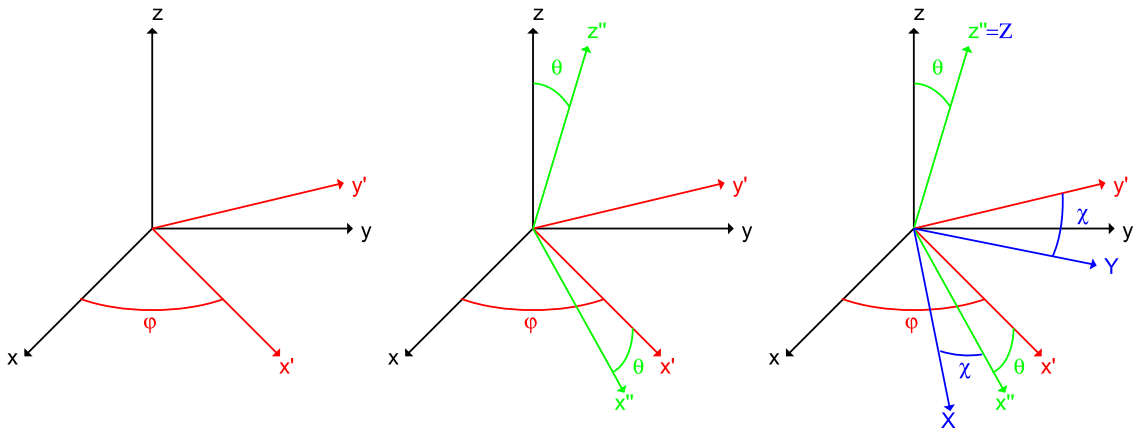


Fig. 4.2: De gauche à droite, action des angles (φ, θ, χ) pour passer du repère moléculaire au repère du laboratoire

propres qui correspondent aux moments d'inertie. La rotation libre d'une molécule peut alors être décrite par l'Hamiltonien suivant :

$$H = AJ_X^2 + BJ_Y^2 + CJ_Z^2, \tag{4.2}$$

avec $A = \dfrac{\hbar}{4\pi c I_X}$, $B = \dfrac{\hbar}{4\pi c I_Y}$ et $C = \dfrac{\hbar}{4\pi c I_Z}$ où c est la vitesse de la lumière. On introduit également le moment cinétique $\overrightarrow{J}$ qui a pour composantes (J_x, J_y, J_z) dans le repère du laboratoire et (J_X, J_Y, J_Z) dans le repère moléculaire. Les composantes du moment cinétique vérifient :

$$\begin{cases} J_Z|j,k,m\rangle & = k|j,k,m\rangle \\ J_z|j,k,m\rangle & = m|j,k,m\rangle \\ J^2|j,k,m\rangle & = j(j+1)|j,k,m\rangle \end{cases}, \tag{4.3}$$

avec $|j,k,m\rangle$ la base des matrices de Wigner. Il convient alors de distinguer plusieurs cas. Le premier est celui d'une molécule linéaire, par exemple une molécule diatomique. Dans ce cas, les axes X et Y ne sont pas définis. La position de la molécule est décrite uniquement par la donnée de l'axe Z. L'Hamiltonien libre[2] s'écrit $H = BJ^2$ et le nombre quantique k n'est pas défini. En réalité, la dynamique est alors restreinte au sous-espace de Hilbert vérifiant $k = 0$. Cela signifie que le moment angulaire est orthogonal à l'axe moléculaire Z. Les niveaux d'énergie sont dégénérés $(2j+1)$ fois. Les états propres constituent alors la base des harmoniques sphériques indicées par les nombres quantiques j et m. On les note $|j,m\rangle$ et les valeurs propres associées sont $E_{j,m} = Bj(j+1)$.

2. On désigne par Hamiltonien libre, l'Hamiltonien décrivant la dynamique du système en l'absence du champ de contrôle. Dans le langage du contrôle optimal on parlerait plutôt de dérive ou de drift.

Le second cas est celui d'une molécule sphérique qui est isotrope dans son repère propre. Le tenseur d'inertie est alors proportionnel à l'identité et l'Hamiltonien prend la même forme que pour une molécule linéaire sauf que le nombre quantique k est défini. Les niveaux d'énergie sont alors dégénérés $(2j+1)^2$ fois. Les valeurs propres de l'Hamiltonien sont données par $E = Bj(j+1)$ et les états propres sont les états $|j,k,m\rangle$ que l'on peut exprimer en fonction des matrices de Wigner [64] :

$$\begin{aligned}\langle\varphi,\theta,\chi|j,k,m\rangle &= \sqrt{\frac{2j+1}{4\pi}}D^j_{m,k}(\varphi,\theta,\chi)^* \\ &= \exp(-\,\mathrm{i}\,m\varphi)\,\langle j,m|\exp(-\,\mathrm{i}\,\theta J_Y)\,|j,k\rangle\exp(-\,\mathrm{i}\,k\chi). \end{aligned} \tag{4.4}$$

Les matrices de Wigner $D^j_{m,k}$ sont des matrices de rotation. Le premier élément du produit correspond à la rotation d'angle φ autour de l'axe z du laboratoire. Le second terme correspond à une rotation d'angle θ autour de l'axe noté Y. L'élément de matrice sur les états $|j,m\rangle$ et $|j,k\rangle$ est considéré car cette rotation permet de transformer l'axe z en Z. Le dernier terme correspond à une rotation de χ autour de Z.

Le troisième cas est celui d'une molécule toupie symétrique. Dans ce cas, seules deux composantes de la matrice d'inertie sont identiques. L'Hamiltonien s'écrit alors : $H = AJ_X^2 + AJ_Y^2 + CJ_Z^2 = AJ^2 + (C-A)J_Z^2$. La brisure de la symétrie sphérique lève la dégénérescence des niveaux d'énergies selon k. Chaque niveau reste cependant dégénéré $(2j+1)$ fois. Les valeurs propres sont alors $E = Aj(j+1) - Ck^2$ et les états propres sont les mêmes que pour la molécule sphérique. En réalité, il convient de distinguer deux cas, le cas de la molécule prolate $A \geq B = C$ et celui de la molécule oblate $A = B \geq C$. Ceci correspond respectivement au cas d'une molécule aplatie et d'une molécule allongée. Dans le cas prolate, la molécule est aplatie et l'axe de symétrie est selon X. Pour cette raison, en général, on inverse les labels des axes Z et X.

Le dernier cas est celui d'une molécule asymétrique. Toutes les composantes du tenseur d'inertie sont alors différentes, $I_X \neq I_Y \neq I_Z$ et l'Hamiltonien libre s'écrit :$H = AJ_X^2 + BJ_Y^2 + CJ_Z^2$. L'Hamiltonien n'est alors plus diagonal dans la base $|j,k,m\rangle$, mais il est diagonal par bloc de valeur m fixée. Chaque bloc est tridiagonal et la base $\{|j,k,m\rangle\}$ n'est plus la base propre de H. On a alors $H|j,k,m\rangle = a_{j,k,m}|j,k+2,m\rangle + b_{j,k,m}|j,k,m\rangle + c_{j,k,m}|j,k-2,m\rangle$ avec a, b et c des coefficients dépendants de j, k et m. On peut retrouver la forme de ces coefficients aisément à l'aide des expressions des composantes des moments cinétiques dans la base de Wigner. Une base avec un nombre quantique τ peut être définie de sorte que H soit diagonal dans celle-ci. On note $|j,\tau,m\rangle$ les composantes de cette base et le nombre τ est défini comme $\tau = |k_A| - |k_C|$ avec k_A et k_C deux nombres quantiques définis

comme la projection de J sur l'axe de symétrie de la molécule prolate (donc X) et la projection de J sur l'axe de symétrie de la molécule oblate (donc Z). $|k_A|$ et $|k_C|$ varient de 0 à j pour une valeur de $J = j$ fixée. La base propre rotationnelle d'une molécule asymétrique peut alors être vue comme une combinaison des états propres des molécules symétriques oblates et prolates. Ces définitions seront utiles par la suite pour pouvoir faire des raisonnements qualitatifs sur la dynamique de la molécule.

4.3.2 Interaction du rotateur rigide avec un champ électrique

Jusqu'ici la dynamique libre de la molécule a été présentée, il reste à introduire les termes d'interaction avec le champ électrique. Tout d'abord, il faut préciser que dans la suite, nous considérons un champ laser classique, c'est-à-dire que le nombre de photons est suffisamment grand pour que celui-ci ait un comportement classique. L'Hamiltonien total du système est alors dit semi-classique dans le sens où la dynamique de la molécule est quantique tandis que la dynamique du laser est classique. Considérons une molécule diatomique hétéronucléaire. La distribution de charge électronique autour de la molécule va alors être inhomogène et anisotrope. La molécule possède un moment dipolaire électrique permanent et en présence d'un champ électrique externe, le moment dipolaire de la molécule va s'orienter dans la direction du champ. L'interaction avec le champ s'écrit alors :

$$H_1 = -\overrightarrow{\mu}.\overrightarrow{E}, \tag{4.5}$$

avec $\overrightarrow{\mu}$ le moment dipolaire électrique de la molécule. Si le champ électrique devient intense, des effets non-linéaires peuvent apparaître. En effet, la distribution de charge autour de la molécule va être modifiée par le champ, le moment dipolaire change et va à son tour interagir avec le champ. Ce nouveau moment dipolaire est appelé moment dipolaire induit. Cela vient du fait que si l'on considère une molécule diatomique homonucléaire alors celle-ci ne possède pas de moment dipolaire permanent et son interaction avec le champ ne se fait que par ce processus de modification de la distribution de charge par le champ qui induit un moment dipolaire.

Ce raisonnement permet d'introduire un développement en série de puissance du champ électrique du moment dipolaire :

$$\mu(\overrightarrow{E}) = \mu.\overrightarrow{E} + \frac{1}{2}\alpha.\overrightarrow{E}^2 + \frac{1}{6}\beta.\overrightarrow{E}^3 + \dots \tag{4.6}$$

Les différents termes composants le moment dipolaire sont des tenseurs d'ordre égal aux degrés du champ. Pour les molécules que nous traiterons par la suite, le moment dipolaire permanent μ sera égal à μ_0, une constante, multipliée par un vecteur unitaire. Le terme d'ordre deux, la polarisabilité sera une matrice 3×3 diagonale dans le repère moléculaire avec pour composantes $(\alpha_{//}, \alpha_\perp, \alpha_\perp)$ où $\alpha_{//}$ et

$\alpha_\perp$ sont respectivement les composantes de la polarisabilité sur des axes parallèle et perpendiculaires à l'axe moléculaire. Évidemment cette forme dépend de la symétrie de la molécule. Ceci est vrai pour les molécules linéaires, sphériques et symétriques mais pas toujours vrai pour une molécule asymétrique. En effet, suivant les symétries de la molécule asymétrique, le tenseur de polarisabilité sera ou non diagonal dans la base propre de la molécule considérée. Pour développer l'interaction avec le champ, il suffit alors d'utiliser la matrice de passage définie précédemment pour faire passer le champ du repère du laboratoire au repère moléculaire. En prenant $\overrightarrow{E} = (E_x, E_y, E_z)$, on trouve que le champ a pour composantes dans le repère moléculaire :

$$\begin{cases} E_X &= \cos\theta\,(E_x\cos\varphi + E_y\sin\varphi) - E_z\sin\theta \\ E_Y &= -E_x\sin\varphi + E_y\cos\varphi \\ E_Z &= \sin\theta\,(E_x\cos\varphi + E_y\sin\varphi) + E_z\cos\theta \end{cases} \tag{4.7}$$

En développant l'interaction avec le champ, on trouve :

$$\begin{aligned} H_1 = \quad & -\mu_0[\cos\theta_x E_x + \cos\theta_y E_y + \cos\theta_z E_z] \\ & -\frac{1}{2}[E_x^2(\Delta\alpha\cos^2\theta_x + \alpha_\perp) + E_y^2(\Delta\alpha\cos^2\theta_y + \alpha_\perp) + E_z^2(\Delta\alpha\cos^2\theta_z + \alpha_\perp) \quad , \\ & +2E_xE_y\Delta\alpha\cos\theta_x\cos\theta_y + 2E_xE_z\Delta\alpha\cos\theta_x\cos\theta_z + 2E_yE_z\Delta\alpha\cos\theta_y\cos\theta_z] \end{aligned} \tag{4.8}$$

avec

$$\begin{cases} \cos\theta_x &= \sin\theta\cos\varphi \\ \cos\theta_y &= \sin\theta\sin\varphi \quad , \\ \cos\theta_z &= \cos\theta \end{cases} \tag{4.9}$$

qui représente les trois cosinus directeurs. Dans l'équation (4.8), le terme d'hyperpolarisabilité a été négligé. Dans la suite, on considèrera que le champ est non résonant avec les fréquences rotationnelles. Cela signifie que la fréquence de la porteuse du champ notée ω sera très supérieure aux fréquences rotationnelles. La fréquence rotationnelle correspondant à la transition $j \to j+n$ est égale à $Bn(2j+n+1)$ avec B de l'ordre du cm^{-1}, c'est-à-dire 10^{-2}THz tandis que la fréquence de la porteuse du champ sera typiquement de l'ordre de 10^2THz. Donc pour être résonant avec le spectre rotationnel, pour une transition $j \to j+1$, il faudrait effectuer une transition du niveau 5000 environ vers le niveau supérieur.

Le champ électrique peut s'écrire sous la forme $\overrightarrow{E}(t) = \mathcal{E}_x\cos(\omega t+\varphi_x)\overrightarrow{u}_x + \mathcal{E}_y\cos(\omega t+\varphi_y)\overrightarrow{u}_y + \mathcal{E}_z\cos(\omega t+\varphi_z)\overrightarrow{u}_z$, avec l'ensemble des phases φ_i déterminant l'état de polarisation de la lumière. Si le champ est non-résonant, cela signifie qu'en effectuant une moyenne sur un intervalle de temps τ tel que $\dfrac{2\pi}{\omega} \ll \tau \ll T_{per}$ où $T_{per} = \dfrac{\pi}{B}$ correspond à une période rotationnelle, le système ne ressent que

l'enveloppe du champ, on a alors :

$$\begin{cases} \langle E_i \rangle &= 0 \\ \langle E_i^2 \rangle &= \dfrac{\mathcal{E}_i^2}{2} \\ \langle E_i E_j \rangle &= \dfrac{\mathcal{E}_i \mathcal{E}_j}{2} \cos(\varphi_i - \varphi_j) \end{cases}, \tag{4.10}$$

avec $\langle a \rangle = \dfrac{1}{\tau} \displaystyle\int_0^\tau \mathrm{d}t a(t)$. Ceci peut se montrer rigoureusement en utilisant la théorie des perturbations. L'interaction avec le champ se simplifie alors :

$$\begin{aligned} H_1 = \; & -\frac{1}{4}[\mathcal{E}_x^2(\Delta\alpha \cos^2\theta_x + \alpha_\perp) + \mathcal{E}_y^2(\Delta\alpha \cos^2\theta_y + \alpha_\perp) + \mathcal{E}_z^2(\Delta\alpha \cos^2\theta_z + \alpha_\perp) \\ & +2\mathcal{E}_x\mathcal{E}_y \cos(\varphi_x - \varphi_y)\Delta\alpha \cos\theta_x \cos\theta_y + 2\mathcal{E}_x\mathcal{E}_z \cos(\varphi_x - \varphi_z)\Delta\alpha \cos\theta_x \cos\theta_z \\ & +2\mathcal{E}_y\mathcal{E}_z \cos(\varphi_y - \varphi_z)\Delta\alpha \cos\theta_y \cos\theta_z] \end{aligned} . \tag{4.11}$$

On constate qu'en prenant une polarisation circulaire dans le plan (x, y), le terme croisé s'annule, la phase relative $(\varphi_x - \varphi_y)$ étant égal à $\dfrac{\pi}{2}$. Ce terme est maximum lorsque la polarisation est linéaire, c'est-à-dire lorsque la phase relative est égale à $k\pi$ avec k entier. Les opérateurs $\cos\theta_i^j$ peuvent être projetés dans la base des harmoniques sphériques $\{|j, m\rangle\}$ et dans la base des matrices de Wigner $\{|j, k, m\rangle\}$. Dans la base des matrices de Wigner, ces opérateurs peuvent être exprimés en une combinaison linéaire de matrices de Wigner $D_{k,m}^j$. L'opérateur $\cos\theta_z$ devient alors :

$$\cos\theta_z = D_{0,0}^1, \tag{4.12}$$

et les éléments de matrices sont :

$$\cos\theta_z|j, m\rangle = \sqrt{\frac{(j-m+1)(j+m+1)}{(2j+1)(2j+3)}}|j+1, m\rangle + \sqrt{\frac{(j-m)(j+m)}{(2j-1)(2j+1)}}|j-1, m\rangle, \tag{4.13}$$

dans la base des harmoniques sphériques et dans la base de Wigner, on trouve :

$$\begin{aligned} \cos\theta_z|j, k, m\rangle = \; & \sqrt{\frac{(j-m+1)(j+m+1)(j-k+1)(j+k+1)}{(2j+1)(2j+3)j^2}}|j+1, k, m\rangle \\ & +\frac{mk}{j(j+1)}|j, k, m\rangle + \sqrt{\frac{(j-m)(j+m)(j-k)(j+k)}{(2j+1)(2j-1)j^2}}|j-1, k, m\rangle. \end{aligned} . \tag{4.14}$$

Le reste des expressions des cosinus est rappelé en annexe avec quelques méthodes de construction évitant les erreurs numériques, notamment dans le cas de la base de Wigner.

Le dernier point concerne la dimension de l'espace de Hilbert. Ce dernier a une dimension infi-

nie. Pour pouvoir traiter le problème numériquement, il convient de tronquer cet espace à une valeur critique que l'on note j_{max}. En effectuant la projection de l'équation de Schrödinger sur cet espace tronqué, une approximation est faite. Elle consiste à négliger le couplage qui existe entre le sous-espace de Hilbert vérifiant $j \leq j_{max}$ et le sous-espace vérifiant $j > j_{max}$. Cette approximation, nommée approximation de Galerkin, est détaillée en annexe (8.5). Notons que cette approximation est physiquement raisonnable car l'intensité du laser utilisé est finie et le nombre de niveaux peuplés aussi.

4.4 Algorithme monotone avec contraintes spectrales

Dans cette section, nous nous intéressons à une application du contrôle optimal à la rotation moléculaire. Le but est de mettre en forme le champ électrique pour réaliser un certain contrôle tout en respectant certaines contraintes spectrales imposées par la physique du problème. Nous utiliserons des algorithmes numériques dits monotones qui ont été décrits dans la section (2.5.1). Une nouvelle version de ces algorithmes sera développée pour satisfaire ces contraintes.

4.4.1 Description de l'algorithme

Dans la littérature, il existe de nombreuses versions d'algorithmes monotones avec de nombreux coûts différents. Ici, nous allons nous intéresser à la prise en compte de contraintes spectrales [32, 65]. Expérimentalement, lors du contrôle d'un système quantique, il peut être utile d'interdire la fréquence caractéristique correspondant à une transition entre deux niveaux. De plus, le contrôle par laser peut être réalisé expérimentalement à l'aide de la technique dite de pulse-shaping pour mettre en forme le champ [66, 67]. Pour rappel, cette technique consiste à faire passer une impulsion dans le plan de Fourier en utilisant un réseau pour la diffracter. Ensuite, à l'aide d'un masque à cristaux liquides, son spectre va être modulé et pour finir, un second réseau va permettre de reconstituer l'impulsion modulée. Il est crucial de calculer une forme de champ de contrôle implémentable expérimentalement par ces techniques de mises en forme. Cependant, l'algorithme, de par sa construction, effectue simultanément le calcul du champ de contrôle et la propagation de l'état $|\psi_{k+1}\rangle$ (voir section (2.5.1)). Or la question du filtrage spectral est un problème qui, par sa nature n'est pas local en temps. Par conséquent, il ne semble pas possible d'écrire un algorithme qui au cours de la propagation et du calcul du champ pourra également filtrer ce dernier. L'idée est alors de séparer l'algorithme en deux blocs distincts, le premier dédié au calcul du champ et le second au filtrage.

Ce nouvel algorithme se base sur la version standard de l'algorithme monotone introduite dans

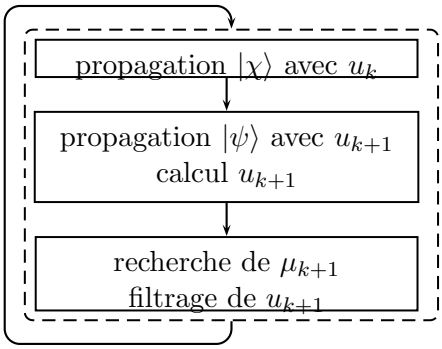


Fig. 4.3: Schéma montrant les modifications à apporter à un algorithme monotone pour prendre en compte des contraintes spectrales. Il suffit d'ajouter un bloc de filtrage à la fin de la séquence d'optimisation du contrôle.

la section (2.5.1). L'originalité de notre méthode consiste simplement à ajouter une étape de calcul pour filtrer le champ. Néanmoins, il y a une difficulté à surmonter. En effet, l'algorithme doit être monotone et donc la différence de coût entre deux itérations successives doit toujours être positive. Pour préserver cette propriété, une idée simple consiste à calculer le nouveau champ de contrôle comme une combinaison linéaire du champ optimal et de sa version filtrée. On note alors :

$$\widetilde{u}_k(t) = \mu u_k(t) + (1-\mu)\mathcal{F}(u_k(t)), \tag{4.15}$$

avec $\mu \in [0,1]$ et $\mathcal{F}(u_k(t))$ le champ filtré. Il suffit donc d'utiliser un algorithme monotone, d'intercaler la formule ci-dessus dans le programme et d'implémenter une fonction permettant de rechercher μ_{k+1} telle que $J_{k+1}(\mu_{k+1}) - J_k(\mu_k) \geq 0$. La figure (4.3) présente cet algorithme avec filtrage.

La méthode de détermination de μ pour que l'algorithme soit monotone doit être précisée. On peut envisager de nombreuses solutions. Dans la section suivante, une méthode de dichotomie a été utilisée avec une condition d'arrêt $\mu_k^j - \mu_k^{j-1} \leq \epsilon$ où j est l'indice de l'itération de la dichotomie tandis que k est l'indice de l'itération de l'algorithme et ϵ un seuil d'arrêt représentant la précision de la recherche. La méthode de dichotomie nous renvoie à la fin deux valeurs. On choisit la valeur respectant $\Delta J > 0$. Dans la dernière section de ce chapitre, la méthode utilisée est plus brutale. Elle consiste à discrétiser l'intervalle $[0,1]$ en n points. On effectue ensuite une interpolation de ces n points et on cherche la valeur de μ telle que la valeur de la fonction interpolée soit égale à 1% du maximum de celle-ci. L'objectif dans la suite n'est pas de discuter la méthode de recherche de μ mais de montrer numériquement que cet algorithme fonctionne et est efficace. Il faut remarquer que numériquement, l'algorithme est plus lourd que la version standard introduite dans (2.5.1). En effet, il faut ajouter à l'algorithme une méthode de line-search pour déterminer μ et cela nécessite de nouvelles évaluations du coût et donc de nouvelles propagations.

4.4.2 Application à température nulle

Pour tester l'algorithme, on considère le problème du contrôle optimal de l'alignement moléculaire. Pour conduire les premiers tests, la température T est fixée à 0K, on peut alors traiter le problème à l'aide de l'équation de Schrödinger. L'état initial est $|j, m\rangle = |0, 0\rangle$. On suppose que le champ est non résonant et l'intensité du laser modérée. L'Hamiltonien du système s'écrit alors :

$$H(t) = BJ^2 - \frac{E_z^2}{4}(\Delta\alpha \cos^2\theta + \alpha_\perp), \tag{4.16}$$

où le champ électrique est polarisé linéairement selon l'axe z. Les paramètres choisis sont ceux du monoxyde de carbone CO, avec $B = 1.931\text{cm}^{-1}$, $\Delta\alpha = 3.92$ unité atomique et $\alpha_\perp = 11.73$ unité atomique. L'opérateur $\cos^2\theta$ ne couple que des états ayant une valeur de j de parité identique et ne couple pas de niveaux ayant des valeurs de m différentes. Partant de l'état pur $|0, 0\rangle$, la dynamique va être restreinte au sous-espace vérifiant $m = 0$ et j pair. L'objectif étant d'atteindre l'état d'alignement maximum, on définit la cible dans ce sous-espace.

Dans l'espace de Hilbert complet, c'est-à-dire de dimension infinie, le maximum que la valeur moyenne de l'observable $\langle\cos^2\theta\rangle$ peut atteindre est 1. Cependant, pour pouvoir traiter le problème, nous sommes obligés de tronquer la base de travail et d'effectuer l'approximation de Galerkin (voir section (4.3)). Dans la base tronquée, la valeur maximum que peut atteindre cette valeur moyenne est notée λ_{max} et correspond à sa valeur propre maximale : $\lambda_{max} = \langle\psi_c|\cos^2\theta|\psi_c\rangle$ avec $|\psi_c\rangle$ l'état propre associé. La cible est définie comme étant cet état propre [68]. Numériquement, nous choisissons la limite $j_{max} = 10$ et $j_{opt} = 8$ ce qui correspond à $\lambda_{opt} = 0.949$. L'état cible est défini dans un sous-espace plus petit, limité par j_{opt}, que l'espace tronqué, limité par j_{max}, pour éviter les effets dits de bord liés à la projection de l'espace infini sur l'espace limité par la valeur j_{max}. Par exemple pour $j_{opt} = 4$, l'état cible prend la forme :

$$|\psi_c\rangle \approx 0.41|0, 0\rangle + 0.74|2, 0\rangle + 0.52|4, 0\rangle \quad \text{et} \quad \lambda_4 \approx 0.87. \tag{4.17}$$

Afin d'avoir une base de comparaison, on commence par calculer une forme de champ de contrôle avec l'algorithme monotone sans filtrage spectral. L'algorithme est initialisé à l'aide d'un champ composé de deux sinusoïdes de fréquences $\omega_1 = 4B$ et $\omega_2 = 10B$. Le temps de contrôle choisi est égal à $t_f = 10T_{per}$, on choisit un temps long, qui est physiquement peu envisageable, dans le but de faciliter la convergence de l'algorithme, l'objectif étant de confirmer le fonctionnement de l'algorithme. L'état cible étant défini dans l'espace limité par $j_{opt} = 8$, on peut constater qu'un champ composé des fréquences précédentes

ne permettra pas d'atteindre la cible. On peut le vérifier sur la figure (4.4). On constate qu'à l'aide des fréquences $\omega_1 = 4B$ et $\omega_2 = 10B$, on peut effectuer un transfert de population en échelle [69], c'est-à-dire qu'en partant du niveau $|0,0\rangle$, on peut peupler le niveau $|2,0\rangle$ puis partant de ce dernier arriver sur le niveau supérieur mais pas au-delà. Pour effectuer la transition $|4,0\rangle \rightarrow |6,0\rangle$, il faut utiliser une troisième fréquence, soit $12B$ $(12B + 10B)$, soit $26B$ $(26B + 4B)$. On constate que la fréquence $26B$ est plus avantageuse car elle permet de générer également la transition $|6,0\rangle \rightarrow |8,0\rangle$. Il faut remarquer que la transfert de population entre deux niveaux fera toujours intervenir au minimum deux fréquences. Cela provient du fait que l'interaction entre la molécule et le laser se fait via le terme de polarisabilité, c'est-à-dire avec le carrée du champ qui fait donc intervenir deux fréquences.

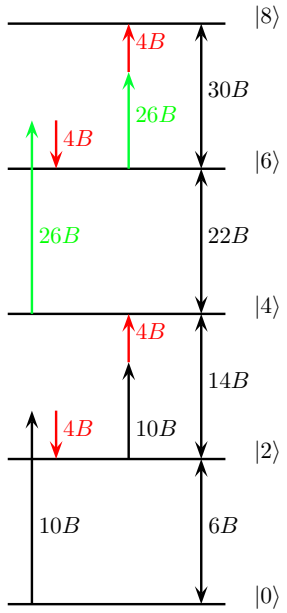


Fig. 4.4: Représentation schématique des fréquences de transition entre les niveaux rotationnels (à droite en noir) du sous-espace $m = 0$, j pair et des combinaisons de fréquences permettant d'effectuer une transition entre deux niveaux consécutifs.

Sur la figure (4.5), on peut voir dans la première colonne à gauche le résultat obtenu par l'algorithme monotone sans filtrage spectrale. La première ligne représente l'évolution temporelle du champ. On constate que celui-ci correspond à une succession de kicks [3] quasiment régulièrement espacés d'environ $T_{per}/3$. L'avant-dernière ligne représente l'évolution de la projection au carré de l'état du système sur l'état cible. On constate qu'à la fin de la séquence de contrôle, l'état du système correspond à l'état cible car la projection est proche de un. La dernière ligne représente l'amplitude spectrale normalisée du champ de contrôle. Le spectre présente un grand nombre de fréquences espacées régulièrement de

3. Dans ce contexte, il faut comprendre le mot kick comme un coup de pied. En effet cela signifie que la largeur temporelle de l'impulsion est faible et que l'on peut se placer en approximation soudaine. D'un point de vue classique, en imaginant la molécule comme un bâton, cela revient à donner un coup de pied pour lui imprimer un moment angulaire important.

$2B$. Cela provient du fait que le sous-espace de travail n'inclut que les états ayant une valeur de j pair. On constate tout de même que les fréquences $4B$ et $10B$ ont une amplitude plus intense, le reste des fréquences permettent de construire la série d'impulsions temporelles. La seconde ligne représente l'évolution des populations, elles évoluent de manière abrupte à chaque impulsion. On constate que le transfert de l'état fondamental vers l'état cible se fait par une montée en échelle. Les premières impulsions peuplent le niveau $|2,0\rangle$, les suivantes transfèrent en partie les populations du niveau $|2,0\rangle$ vers le niveau $|4,0\rangle$ et ainsi de suite.

La seconde colonne correspond à l'utilisation de l'algorithme monotone avec filtrage spectrale. Le filtre utilisé est un filtre passe bande constitué de plusieurs fenêtres centrées en $4B$, $10B$ et $26B$ et ayant une largeur spectrale de $B/2$. Sur la première ligne, la forme temporelle du champ parait plus complexe. On observe une enveloppe en dessous de laquelle des oscillations plus rapides sont présentes. L'enveloppe sinusoïdale provient du paramètre $\lambda(t)$ de l'algorithme monotone, la forme choisie est $\lambda(t) = \dfrac{\lambda_0}{\sin(\pi t/t_f)}$. Sur l'avant dernière ligne, la projection obtenue au temps final est proche de un, la cible est donc atteinte au temps final. La dernière ligne montre l'amplitude spectrale normalisée du champ optimal filtré. On constate qu'à la fin de l'optimisation, seules les fréquences $4B$, $10B$ et $26B$ sont présentes. Ce résultat n'est pas du tout trivial. Le filtre choisi aurait pu être tel que l'algorithme choisisse une valeur de μ constamment égal à un, ce qui aurait eu pour effet de ne jamais filtrer le champ et donc d'exhiber tout une gamme de fréquences comme dans la première colonne. Pour finir, sur la seconde ligne, l'évolution des populations est cette fois plus lisse avec un effet de montée en échelle depuis l'état fondamental vers l'état cible moins prononcé.

Sur les deux premières colonnes de la figure (4.5), le champ d'initialisation était un champ composé de deux fréquences, $4B$ et $10B$, ceci constituait un bon point de départ. La figure (4.4) montre que l'on a intérêt à utiliser ces fréquences. Pour cette raison, il est intéressant de refaire les mêmes calculs mais avec un point de départ différent. Pour les deux dernières colonnes de la figure (4.5), le champ d'essai est une gaussienne de largeur à mi-hauteur de 3ps, ce qui correspond à environ $0.35T_{per}$. Le spectre du champ d'essai est alors gaussien. La troisième colonne correspond au cas sans filtrage. Sur la première ligne, le champ optimal obtenu a une forme temporelle composée d'impulsion mais cette fois, le nombre d'impulsions nécessaires est moindre et leur espacement n'est pas régulier. De plus, seulement deux périodes rotationnelles sont utilisées pour contrôler le système. Sur la troisième ligne, on constate que l'état cible est atteint à environ $T_{per}/2$. La dynamique libre du système étant périodique, on observe que la projection passe périodiquement par un. Sur la dernière ligne, l'amplitude spectrale est cette fois très riche, avec des pics très larges. On observe tout de même un pic très marqué autour de $0B$ et de $6B$. Cette dernière fréquence correspond à une transition directe entre $|0,0\rangle$ et $|2,0\rangle$. Les transitions

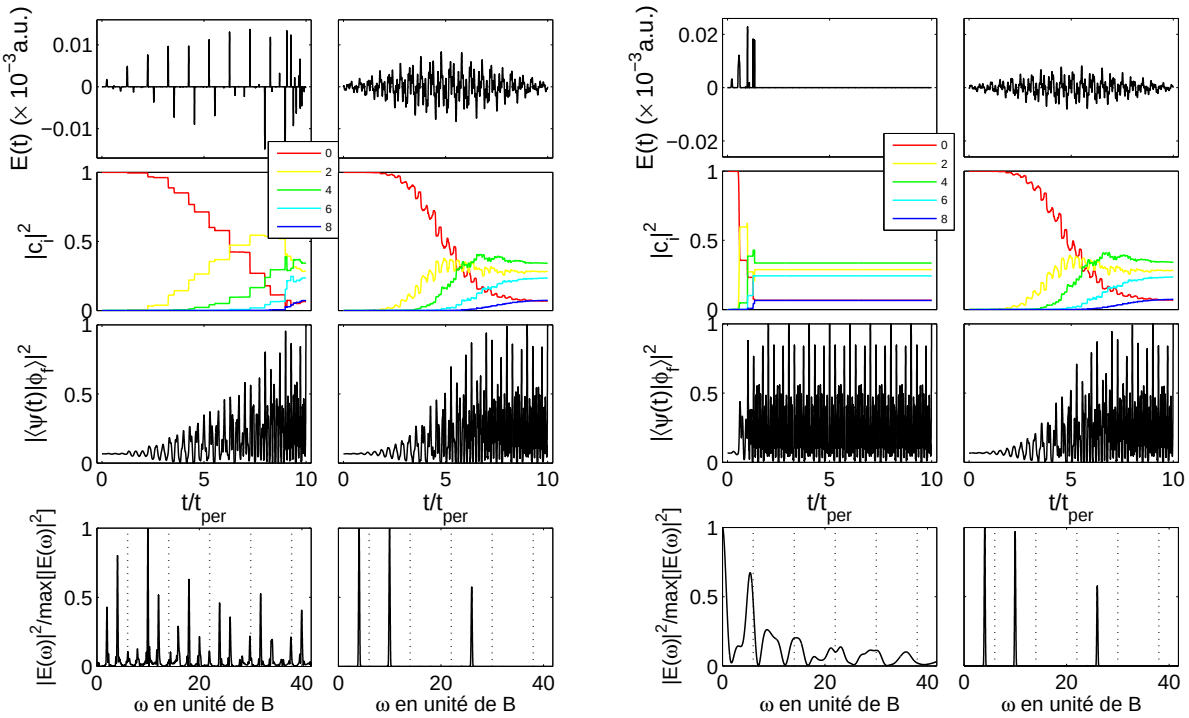


Fig. 4.5: Première ligne : champ de contrôle en fonction du temps. Deuxième ligne : évolution de la population du système. Troisième ligne : évolution de la projection sur l'état cible. Quatrième ligne : amplitude spectrale normalisée du champ de contrôle. (De gauche à droite) La première colonne correspond au cas d'une optimisation sans filtrage et la seconde colonne à une optimisation avec filtrage. Ces deux cas sont initialisés avec le champ suivant : $E_i = E_0(\sin(4Bt) + \sin(10Bt))$. La troisième colonne correspond au cas d'une optimisation sans filtrage et la quatrième colonne à une optimisation avec filtrage. Ces deux cas sont initialisés avec un champ gaussien.

se font donc avec la combinaison des fréquences rotationnelles et d'une composante continue. Sur la seconde ligne, on constate cette fois que le transfert de population est très abrupt et qu'il ne se fait pas avec une montée en échelle.

Pour finir, sur la dernière colonne qui correspond au cas de l'optimisation avec filtrage spectrale ayant pour point de départ une gaussienne, on constate que l'algorithme converge vers la même solution que la solution de la seconde colonne, qui correspond au cas de l'optimisation avec filtrage mais avec un champ d'essai bichromatique. Ceci est un point non-trivial. Les champs d'essai choisis sont très différents mais les contraintes spectrales du filtre sont tels que dans les deux cas, l'algorithme converge vers la même solution. L'algorithme monotone avec contraintes spectrales est apte à trouver des formes de champs de contrôle respectant des contraintes précises spectralement. Du point de vue des expériences et du contrôle par laser, il est important de savoir s'il est possible de trouver des formes de contrôle satisfaisant non pas un filtre passe-bande mais un filtre discrétisant le spectre. Ce dernier point permet de simuler la technique de mise en forme d'impulsion laser par pulse-shaping. C'est

précisément ce dernier point qui est abordé dans la section suivante.

4.4.3 Application au cas du pulse-shaping

Dans cette section, on s'intéresse à l'application de l'algorithme précèdent pour la mise en forme du contrôle par pulse-shaping. L'objectif est une nouvelle fois d'atteindre l'état d'alignement maximum mais cette fois à température non-nulle. La dynamique est alors décrite par l'équation de Liouville :

$$\mathrm{i}\,\frac{\partial}{\partial t}\rho(t) = [H(t), \rho(t)]\,, \tag{4.18}$$

avec $\rho(t)$ la matrice densité représentative de l'état du système et $H(t)$ le même Hamiltonien que dans la section précédente. L'état initial est une distribution de Boltzmann vérifiant :

$$\rho_0 = \frac{1}{Z}\sum_{j=0}^{+\infty}\sum_{m=-j}^{j} e^{-\frac{Bj(j+1)}{k_B T}}|j,m\rangle\langle j,m|, \quad Z = \sum_{j=0}^{+\infty}\sum_{m=-j}^{j} e^{-\frac{Bj(j+1)}{k_B T}} \tag{4.19}$$

avec Z la fonction de partition, k_B la constante de Boltzmann et T la température. L'état cible doit être défini dans le cadre du formalisme de la matrice densité [70]. Ayant déterminé une cible ρ_{opt} qui maximise la valeur moyenne de l'observable $\cos^2\theta$ dans le sous-espace tel que $j \leq j_{opt}$, il faut définir un filtre. L'idée de la technique de pulse shaping est d'utiliser un réseau de Bragg pour disperser l'impulsion. Ceci revient à effectuer une transformée de Fourier. Ensuite, le faisceau diffracté passe à travers un masque à cristaux liquide (LCD) qui permet de contrôler l'amplitude spectral du signal ainsi que sa phase. Le nombre de pixels étant fini, cela revient à dire que l'on a modulé l'impulsion incidente et généré un spectre discret. Ensuite, le faisceau se diffracte sur un second réseau de Bragg afin de reconstituer l'impulsion. Ceci correspond à la transformée de Fourier inverse. Mathématiquement, en définissant le filtre $\mathcal{G}(\omega)$, on peut définir le champ filtré comme : $\tilde{E} = \mathrm{TF}^{-1}\left(\mathcal{G}(\omega)\mathrm{TF}\left(E(t)\right)\right)$.

Dans ce contexte, notre but sera de calculer un champ optimal dont le spectre sera discret et donc implémentable expérimentalement. Nous pourrons par la suite, à partir d'une impulsion gaussienne, trouver comment moduler le spectre de la gaussienne pour reproduire la séquence de contrôle optimal. L'ajout de l'étape de filtrage requiert d'effectuer de nombreuses propagations et empêche de trop augmenter la taille maximale de la base de calcul et donc la température. Les tests sont effectués à la température $T = 5$K. On définit l'état cible dans l'espace tronqué par la valeur $j_{opt} = 8$ et la propagation se déroule dans un espace élargi tronqué par la valeur $j_{max} = 10$. La largeur totale du filtre utilisé est $5\Delta E_{k+2,k}$. Pour $k = 5$, ceci correspond à une largeur $10B$ soit 7.28THz pour la molécule CO. Cette largeur est cohérente avec la largeur spectrale de mise en forme d'une impulsion.

On choisit de mettre en forme une impulsion gaussienne correspondant à une impulsion transformée de Fourier limite, c'est-à-dire une impulsion vérifiant $\Delta T \Delta f \approx 0.441$ avec ΔT la largeur à mi-hauteur de l'impulsion et Δf la largeur à mi-hauteur de l'amplitude spectrale de l'impulsion. La majeure partie de l'énergie de l'impulsion est comprise dans une largeur de $5\Delta f$, en choisissant une impulsion de largeur 300fs, on trouve $5\Delta f \approx 7$THz. La largeur totale du filtre est ensuite divisée par le nombre de pixels du masque. Avec le matériel actuellement disponible dans les laboratoires, le nombre de pixels peut aller jusqu'à 640. Dans la suite, nous nous limiterons de façon arbitraire à un nombre de 256.

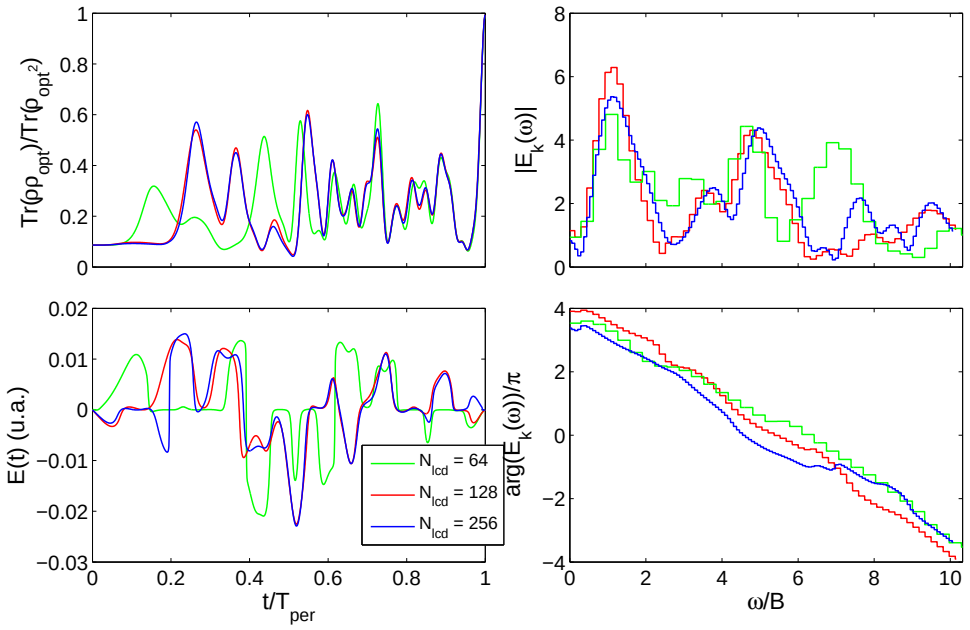


Fig. 4.6: Résultats de l'optimisation avec un filtre discrétisant le spectre du contrôle pour atteindre l'état aligné à $T = 5$K. En haut à gauche, évolution de la projection. En bas à gauche, la forme temporelle du champ de contrôle. En haut à droite, l'amplitude spectrale du contrôle. En bas à droite, la phase spectrale du contrôle.

Le filtrage est effectué sur la phase et l'amplitude du spectre. Expérimentalement, il est possible de mettre en forme seulement la phase ou la phase et l'amplitude. On effectue des tests pour différents nombres de pixels : 64, 128 et 256. Le temps total est fixé à $t_f = T_{per}$. Ceci est plus réaliste que dans la partie précédente, l'objectif étant de trouver cette fois une solution proche des contraintes expérimentales. En effet, pour des temps trop longs, la dissipation (les collisions entre les molécules) commence à jouer un rôle dans la dynamique, ce qui n'est pas désiré dans notre cas. La forme du champ est présentée sur la figure (4.6). On constate que la forme est plutôt complexe. Cependant, on peut constater que la forme des contrôles calculés pour 128 et 256 pixels est proche à quelques sauts de phase près. Par exemple, autour de $0.2T_{per}$, on constate que les champs diffèrent d'une phase de π. Dans les trois cas, l'optimisation conduit à une projection de 99%. L'évolution temporelle de

celle-ci est présentée en haut à gauche de la figure (4.6). La forme du champ tend à converger vers une forme précise en augmentant le nombre de pixels du masque. Numériquement, nous avons constaté que la convergence était plus difficile pour un nombre de pixels petit, ce qui est cohérent avec le fait que diminuer le nombre de pixels correspond à imposer des contraintes encore plus fortes. Ces résultats sont très encourageants. Nous pourrions envisager d'utiliser une solution de ce type avec un dispositif expérimental réel de pulse-shaping afin de contrôler la rotation des molécules, notamment pour déterminer une solution permettant de contrôler les états qui seront définis dans la suite du chapitre.

4.5 Délocalisation planaire

4.5.1 Construction de l'état d'alignement planaire

L'alignement moléculaire a connu un très fort engouement ces dernières années, mais le contrôle de la rotation moléculaire a également vu naître d'autres concepts comme notamment le contrôle du sens de la rotation [71, 72, 73, 74]. Cette partie s'intéresse à la construction d'un état spécifique de la dynamique rotationnelle ainsi qu'à la construction d'une méthode de contrôle simple implémentable expérimentalement. Cet état particulier a la particularité d'être délocalisé dans un plan de manière permanente en l'absence de champ. Cela signifie que la densité de probabilité de la molécule va être confinée dans un plan (voir figure (4.7)). De plus, on impose à cet état de rester délocalisé au cours du temps en l'absence de champ de contrôle. Cet état est défini comme l'état minimisant la moyenne temporelle de la moyenne quantique de l'observable $\cos^2\theta$ où l'angle θ décrit l'angle d'orientation de l'axe moléculaire par rapport à l'axe z du laboratoire.

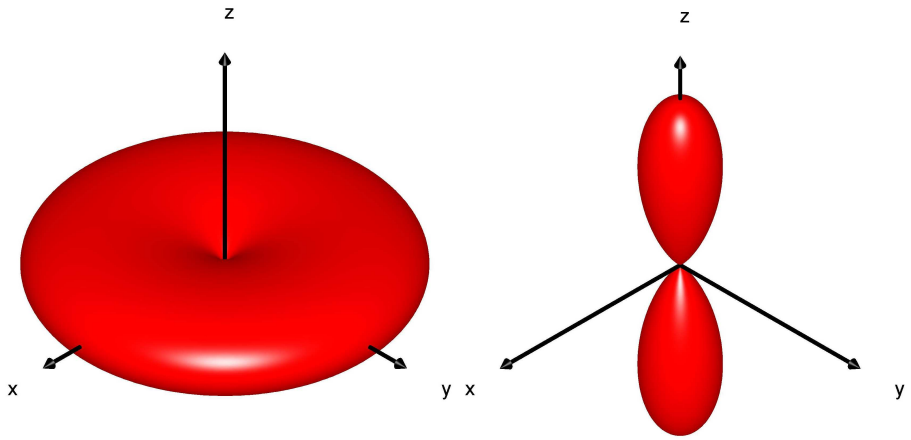


Fig. 4.7: Illustration de la délocalisation planaire et de l'alignement moléculaire respectivement à gauche et à droite. Ces figurent représentent les densités de probabilité des molécules délocalisée et alignée.

Plus formellement, l'observable à minimiser pour déterminer l'état délocalisé est :

$$C = \frac{1}{T_{per}} \int_0^{T_{per}} \mathrm{d}t \, \langle \psi(t) | \cos^2\theta \, | \psi(t) \rangle \, . \tag{4.20}$$

En l'absence de champ de contrôle, l'état du système évolue selon : $|\psi(t)\rangle = e^{-\mathrm{i}\, t H_0} |\psi_0\rangle$ avec $|\psi_0\rangle = \sum_{j=0}^{+\infty} \sum_{m=-j}^{j} c_{j,m} |j,m\rangle$, donc on a : $|\psi(t)\rangle = \sum_{j=0}^{+\infty} \sum_{m=-j}^{j} c_{j,m} e^{-\mathrm{i}\, B j(j+1) t} |j,m\rangle$. De plus, on connait l'expression de l'opérateur $\cos^2\theta$ dans la base propre de H_0, la base $|j,m\rangle$:

$$\cos^2\theta |j,m\rangle = A_{j,m} |j+2,m\rangle + B_{j,m} |j,m\rangle + C_{j,m} |j-2,m\rangle, \tag{4.21}$$

les coefficients $A_{j,m}$, $B_{j,m}$ et $C_{j,m}$ sont rappelés en annexe. Il est alors possible de développer l'équation (4.20) à l'aide de l'expression de $\cos^2\theta$ et de l'expression de $|\psi(t)\rangle$. On obtient :

$$\begin{aligned} C &= \frac{1}{T_{per}} \int_0^{T_{per}} \mathrm{d}t \sum_{j=0}^{+\infty} \sum_{m=-j}^{j} \sum_{j'=0}^{+\infty} \sum_{m'=-j'}^{j'} e^{\mathrm{i}\, B[j(j+1) - j'(j'+1)] t} \left\langle j', m' \right| \cos^2\theta \, |j,m\rangle \\ &= \sum_{j=0}^{+\infty} \sum_{m=-j}^{j} |c_{j,m}|^2 B_{j,m} + \sum_{j=0}^{+\infty} \sum_{m=-j}^{j} 2 \, \mathrm{Re} \left(\frac{A_{j,m} c_{j,m} c^*_{j+2,m}}{T_{per}} \int_0^{T_{per}} \mathrm{d}t e^{\mathrm{i}\, B(4j+6) t} \right) \\ &= \sum_{j=0}^{+\infty} \sum_{m=-j}^{j} |c_{j,m}|^2 B_{j,m}. \end{aligned} \tag{4.22}$$

Dans l'exponentielle, le terme $(4j+6)$ est pair et T_{per} correspond à la période rotationnelle. Le terme contenant l'intégrale s'annule donc pour toutes les valeurs de j. Pour identifier l'état délocalisé, il faut alors déterminer l'ensemble des coefficients $c_{j,m}$ qui minimisent C. L'expression de $B_{j,m}$ est :

$$B_{j,m} = \frac{2j^2 - 2m^2 + 2j + 1}{(2j-1)(2j+3)}. \tag{4.23}$$

Or on constate que l'évolution de $B_{j,m}$ en fonction de m, à j fixé, est une parabole inversée. De plus, m vérifie la relation $|m| \leq j$, on en déduit alors que $B_{j,m}$ est minimisé pour les valeurs $m = \pm j$ et $B_{j,j} = \dfrac{1}{2j+3}$. D'après cette dernière expression, C sera minimisé par l'état $|j,j\rangle$ avec $j \to +\infty$. Dans ce cas, on a $C \to 0$. Il faut remarquer que $B_{j,j}$ décroît rapidement quand j augmente, on peut donc imaginer des superpositions d'états $|j,j\rangle$ correspondant à $C \approx 0$ si les valeurs de j sont suffisamment grandes.

4.5.2 Contrôle optimal de l'alignement planaire

A présent qu'un état délocalisé a été défini, il faut chercher comment atteindre un tel état. Une première idée consiste à utiliser un algorithme monotone avec un champ polarisé circulairement (*i.e.* $\Phi = \pi/2$ voir la section (4.3.2)) dans le plan (x, y) afin d'atteindre un état $|j, j\rangle$. A l'aide de l'équation (4.11), on peut écrire l'interaction sous la forme :

$$H = H_0 - \frac{1}{4}\left(E_x^2(\Delta\alpha\cos^2\theta_x + \alpha_\perp) + E_y^2(\Delta\alpha\cos^2\theta_y + \alpha_\perp)\right). \tag{4.24}$$

La polarisation choisie étant circulaire, il n'y a pas de terme croisé et l'hamiltonien ne présente pas de couplage entre les espaces pair et impair. En supposant que la température est nulle dans un premier temps, l'état initial est $|\psi(0)\rangle = |0, 0\rangle$. Cet état étant pair, il faut donc définir un état cible pair également : $|\psi_c\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|j, j\rangle + |j, -j\rangle)$ avec j pair. Le problème de contrôle est restreint à l'espace pair vérifiant j pair et m pair. Numériquement, on trouve les résultats présentés sur la figure (4.8). On constate que la molécule est effectivement délocalisée dans le plan (x, y). Dans les deux cas, la valeur moyenne de l'observable $\cos^2\theta_z$ est petite. Elle prend la valeur $B = 1/(2 \times 8 + 3) \approx 0.053$ et les deux autres valeurs moyennes prennent des valeurs de l'ordre de 1/2. L'algorithme monotone montre

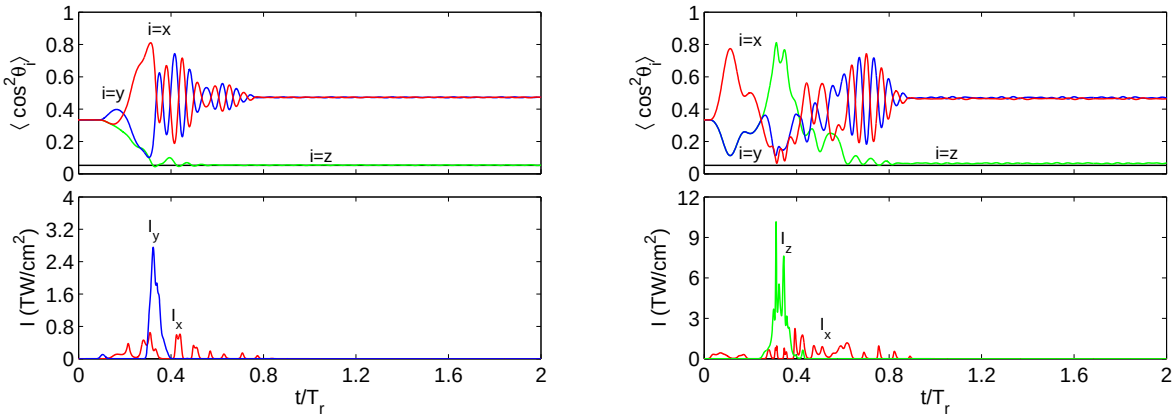


Fig. 4.8: (Haut) Évolution du carré des cosinus directeurs. (Bas) Intensité des champs de contrôle. Résultats numériques obtenus à $T = 0$K en partant de l'état $|0, 0\rangle_+$ et en arrivant sur l'état $|8, 8\rangle_+$

que l'état délocalisé est accessible à l'aide de champ laser non résonant. En réalité, il faut modérer nos propos. L'état cible est accessible dans le cadre de l'approximation de Galerkin, le problème de la contrôlabilité dans la base de dimension infinie étant plus complexe [17].

L'étape suivante est de trouver un compromis entre une stratégie de contrôle simple implémentable expérimentalement et capable d'exhiber un effet de délocalisation planaire et une solution obtenue par contrôle optimal qui atteint l'état cible défini précédemment avec une grande efficacité.

Une première approche possible est l'utilisation d'un algorithme heuristique tel que les algorithmes évolutionnaires. Le choix de l'optimisation fréquentielle pour débuter est intéressant. En effet, expérimentalement les techniques de pulse-shaping permettent de moduler l'amplitude et la phase spectrale d'un champ incident afin de modifier son enveloppe temporelle [66, 67], il suffit alors numériquement de reproduire le processus de mise en forme. Dans ce cadre, l'algorithme évolutionnaire va chercher la meilleure combinaison de valeurs composant le spectre discret. Dans notre cas, on considère une impulsion gaussienne selon x et y et on va chercher à moduler la phase spectrale du contrôle. On obtient alors les résultats de la figure (4.9). On constate que temporellement, la solution consiste à peu près à envoyer quatre impulsions, trois selon x et une plus intense selon y. Ce résultat est une stratégie qui réapparaît majoritairement sur l'ensemble des optimisations effectuées. L'optimisation en fréquence tend à montrer qu'il faut à présent effectuer une optimisation temporelle sur le délai et l'amplitude d'un nombre fini d'impulsions. On effectue des optimisations en considérant deux

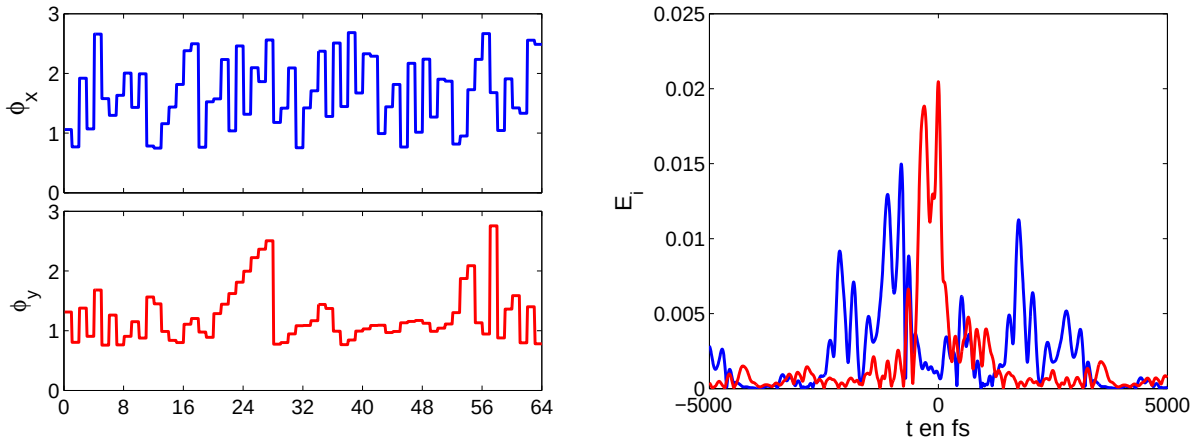


Fig. 4.9: (Gauche) Phases discrètes mises en forme sur une base de 64 pixels. (Droite) Formes temporelles des champs de contrôle. Le pas Δf du filtre est fixé à 0.25THz

impulsions selon x et une impulsion selon y. Après une cinquantaine d'optimisations, on constate un schéma fréquent, celui-ci est présenté sur la figure (4.10). Cette stratégie utilise un ratio de 2 entre l'amplitude des impulsions selon y et x et un délai d'environ $T_{per}/2$ séparant la première impulsion selon x de l'impulsion selon y et un délai d'environ $T_{per}/4$ entre l'impulsion selon y et la deuxième impulsion selon x.

A présent qu'une stratégie simple du point de vue expérimental a été découverte, il faut effectuer des tests à température non nulle afin de confirmer que cette solution est robuste avec la température. Après de multiples essais, on constate que la solution montre une bonne robustesse à la température jusqu'à une température d'environ 50K. Au-delà, l'effet de la troisième impulsion est négatif. Il faut alors envisager l'utilisation d'une stratégie encore plus simple : la stratégie bi-impulsions. Cette méthode

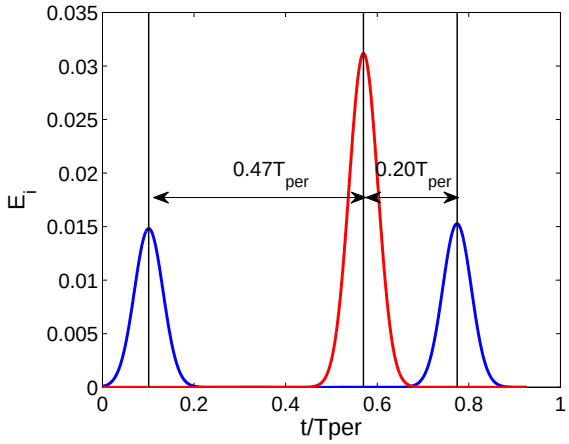


Fig. 4.10: Séquence de contrôle typique obtenu par l'algorithme évolutionnaire avec deux impulsions selon x et une impulsion selon y. Le ratio E_y/E_x est environ de deux et les délais sont environ de $T_{per}/2$ et $T_{per}/4$

est identique à la précédente mais sans la troisième impulsion. La robustesse envers la température de cette solution est très bonne comme le montre la figure (4.11). Les simulations sont effectuées à l'aide de l'équation de Liouville et l'état initial est pris comme une distribution de Boltzmann :

$$\rho_0 = \frac{1}{Z}\sum_{j=0}^{+\infty}\sum_{m=-j}^{j} e^{-\frac{Bj(j+1)}{k_B T}}|j,m\rangle\langle j,m|, \quad Z = \sum_{j=0}^{+\infty}\sum_{m=-j}^{j} e^{-\frac{Bj(j+1)}{k_B T}}, \tag{4.25}$$

avec Z la fonction de partition, k_B la constante de Boltzmann et T la température. Pour une température de $T = 100$K, 99% de la population est dans un état inférieur à $j = 29$. La figure (4.11) représente l'évolution des valeurs moyennes des observables $\langle\cos^2\theta_i\rangle$ sous l'influence du champ selon x à $t = 0$ avec $I_{0_x} = 55\text{TW/cm}^2$ et du champ selon y à $t = T_{per}/2$ avec $I_{0_y} = 120\text{TW/cm}^2$. Après la phase de contrôle, 99% de la population est dans un état inférieur à $j = 77$. Dans la partie basse de la figure (4.11), les densités de probabilité ont été tracées.

Sur cette figure, la première densité de probabilité correspond à la distribution de Boltzmann. On constate qu'elle est isotrope. C'est ce qui est observé sur l'évolution des observables. A l'instant initial on vérifie $\langle\cos^2\theta_i\rangle = \dfrac{1}{3}$ pour $i = \{x, y, z\}$. La seconde densité de probabilité est alignée selon l'axe x du laboratoire. Elle est tracée juste après l'action de l'impulsion selon x. Le troisième cas est tracé juste après l'action de la seconde impulsion selon y. La densité de probabilité est alors alignée selon y et confinée dans le plan (x, y), on commence à observer une délocalisation. Le dernier cas correspond à la densité de probabilité tracée entre deux transitoires. Dans ce cas, la densité de probabilité est délocalisée dans le plan (x, y) avec un alignement un peu plus marqué selon l'axe y, ce que l'on peut constater sur la figure représentant l'évolution des valeurs moyennes des observables.

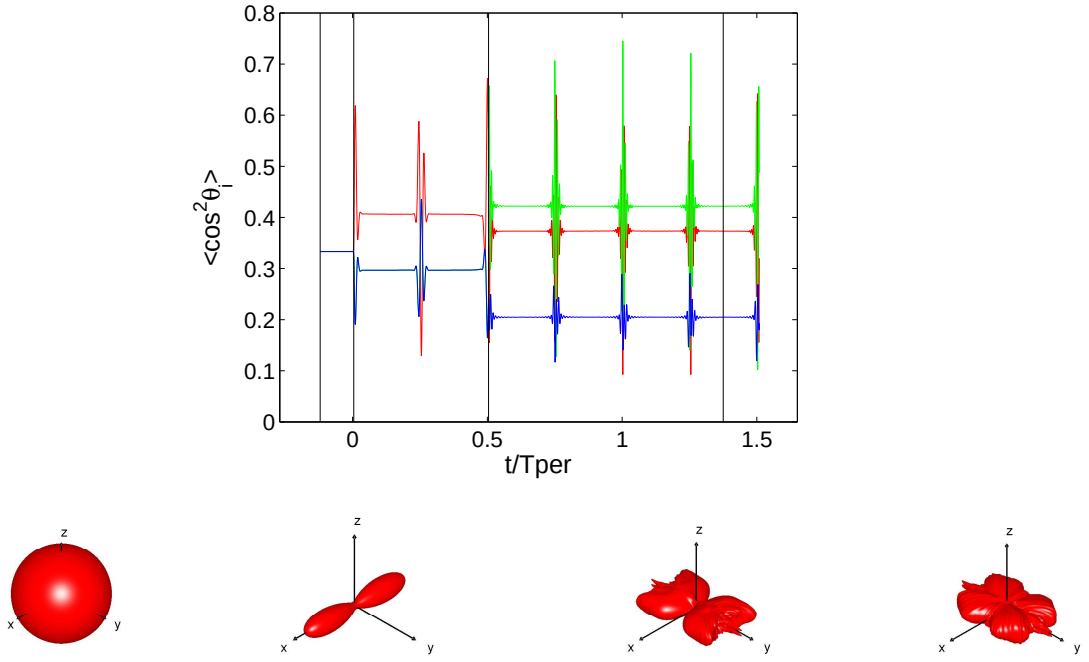


Fig. 4.11: (Haut) Évolution des valeurs moyennes des observables $\langle \cos^2 \theta_i \rangle$ en fonction du temps à $T = 100$K, en rouge suivant x, en vert suivant y et en bleu suivant z. Les impulsions utilisées ont une intensité de 55TW/cm^2 selon x et une intensité de 120TW/cm^2 selon y. (Bas) Densités de probabilité associées aux traits noirs verticaux du cadre supérieur. Sur la dernière figure, on constate que la molécule est délocalisée dans le plan (x, y) et légèrement plus alignée selon y, ce que l'on vérifie au niveau de la trace temporelle des observables.

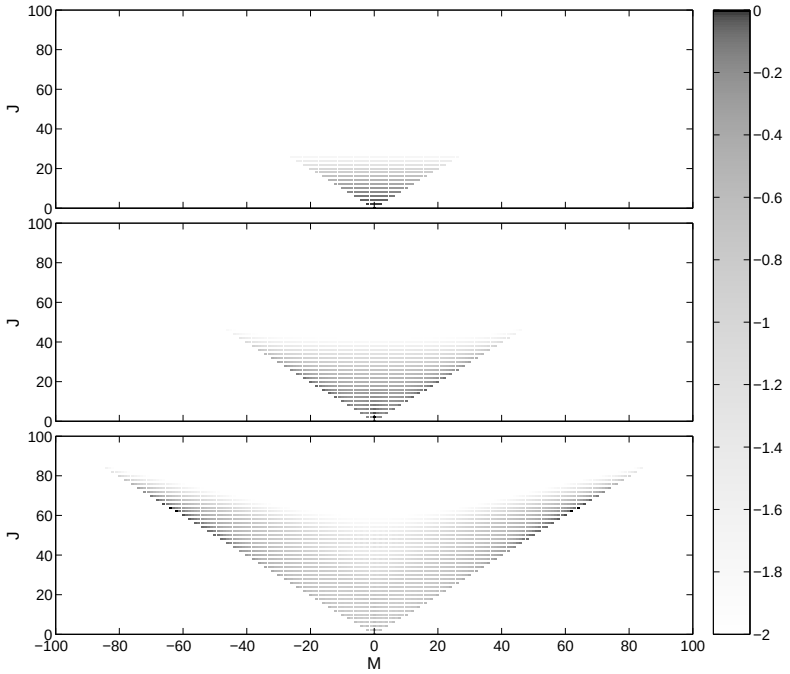


Fig. 4.12: Distribution de la population en fonction de j et m. Les conditions sont les mêmes que sur la figure (4.11). De haut en bas, distribution de population initiale, distribution de population après la première impulsion et après les deux impulsions. La couleur dépend de $\log_{10}\left(\frac{|c_{j,m}|^2}{\max|c_{j,m}|^2}\right)$. On constate que la population est très localisée autour des lignes $(j,-j)$ et (j,j) avec une forte localisation autour de la valeur $j=60$. Cette distribution permet de comprendre pourquoi la molécule est délocalisée.

La figure (4.12) représente, de bas en haut, les populations initiales du systèmes, les populations après interaction avec la première impulsion et les populations à la fin de la stratégie de contrôle. Après l'interaction avec les deux impulsions, la population forme un motif en "V" indiquant une plus forte population sur les états $|j,j\rangle$, le moment angulaire est donc aligné et par conséquent la molécule est délocalisée.

Les résultats théoriques de la stratégie de contrôle bi-impulsion sont très encourageants. Le prolongement naturel de cette étude conduit à la section suivante qui traite de l'implémentation expérimentale de cette solution. Soulignons également que l'on a pu généraliser ces résultats aux cas de molécules symétriques et asymétriques [75]. Là encore, la stratégie bi-impulsion se révèle particulièrement efficace.

4.5.3 Délocalisation planaire : Expérience

Dans cette section, les résultats expérimentaux de la délocalisation planaire sont présentés. Ce travail a été réalisé en collaboration avec l'équipe d'expérimentateurs d'Olivier Faucher. Le protocole de contrôle utilisé est la stratégie bi-impulsions séparées temporellement de $T_{per}/2$. La molécule considérée est CO_2. Afin de pouvoir observer un effet visible, les molécules sont refroidies par une technique utilisant un jet-moléculaire continu de CO_2. Le principe est laisser s'échapper le gaz par une tuyère d'un diamètre de 250μm et par expansion rapide du nuage de molécules, celui-ci est refroidi. De cette façon, le gaz atteint une température d'environ 100K. Le jet moléculaire est injecté dans une cuve disposant de hublots autorisant l'utilisation de laser pour manipuler le système. Il faut remarquer que les molécules gardent une certaine vitesse translationnelle. Or la taille des différents faisceaux laser mis en jeu est finis, en général de l'ordre de 30μm. A 100K, la vitesse thermodynamique des molécules de CO_2 est d'environ 250m.s^{-1}. Pendant une période rotationnelle d'environ 42.7ps, une molécule se déplace d'environ 10nm ce qui est négligeable par rapport à la taille du faisceau. On peut donc négliger la translation des molécules durant l'expérience.

L'expérience se déroule de la façon suivante : on commence par envoyer la séquence composée des deux impulsions polarisées orthogonalement afin de délocaliser les molécules. Ensuite, une troisième impulsion est envoyée avec un délai variable afin de pouvoir mesurer la valeur moyenne des observables $\langle \cos^2 \theta_i \rangle$ pour chaque délai. Un photo-détecteur capte l'amplitude du signal de la sonde ayant traversé l'échantillon. La mesure se fait indirectement au travers de la mesure de la biréfringence exhibée par l'échantillon en présence d'une impulsion sonde envoyée à 45° par rapport aux deux axes fixes i et j [57]. Cette méthode de détection permet de mesurer un signal $S_{i,j}$ proportionnel à la différence d'indice Kerr, d'expression :

$$n_i - n_j \approx \frac{\rho \Delta\alpha}{2\bar{n}\epsilon_0}(\langle \cos^2 \theta_i \rangle - \langle \cos^2 \theta_j \rangle), \tag{4.26}$$

avec $\bar{n} = \frac{1}{2}(n_i + n_j)$, ϵ_0 la permittivité du vide et $\Delta\alpha = \alpha_{//} - \alpha_{\perp}$, la différence des composantes orthogonale et parallèle de la polarisabilité.

Expérimentalement une première série de mesure est effectuée en fixant la polarisation de la première impulsion selon x et de la seconde selon y avec la sonde polarisée linéairement à 45° dans le plan (x, z). Cela permet d'obtenir le signal $S_{x,z}$. Ensuite, dans la seconde série de mesure, on tourne de 90° autour de l'axe z l'ensemble des deux pompes. Ceci est équivalent à effectuer une rotation de -90° de l'axe de propagation de la sonde. Ceci est expérimentalement plus simple car il n'y a pas besoin de modifier beaucoup le montage, il suffit juste de changer la polarisation des deux pompes se propageant selon z (figure (4.13)). Avec cette dernière série de mesure, on obtient le signal $S_{y,z}$. Les deux signaux

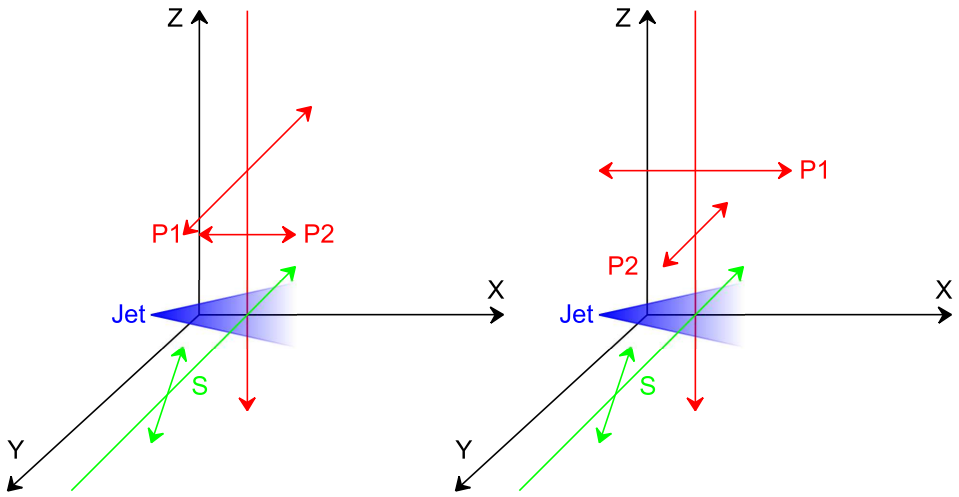


Fig. 4.13: Schéma de l'expérience : en rouge, les pompes 1 et 2 pour délocaliser les molécules, en vert, l'impulsion sonde pour mesurer les observables et en bleu, le jet moléculaire. Le schéma de gauche correspond à la mesure de $S_{x,z}$ et le schéma de droite à la mesure de $S_{y,z}$.

ont la forme suivante :

$$\begin{cases} S_{x,z} & \propto \langle \cos^2\theta_x \rangle - \langle \cos^2\theta_z \rangle \\ S_{y,z} & \propto \langle \cos^2\theta_y \rangle - \langle \cos^2\theta_z \rangle \end{cases} . \tag{4.27}$$

En additionnant ces deux signaux, on obtient une quantité proportionnelle à $S = \langle \cos^2\theta_x \rangle + \langle \cos^2\theta_y \rangle - 2\langle \cos^2\theta_z \rangle$. Or comme les observables respectent la relation de normalisation suivante : $\sum_i \langle \cos^2\theta_i \rangle = 1$, $i = \{x, y, z\}$, on peut alors écrire :

$$S = 1 - 3\langle \cos^2\theta_z \rangle. \tag{4.28}$$

Expérimentalement, le laser est un laser solide de type Ti :saphire avec une longueur d'onde de $\lambda =$ 800nm pour l'onde porteuse optique et des largeurs d'impulsion de 100fs. Le taux de répétition des impulsions est de 100Hz, cela signifie que l'expérience peut être réalisée cent fois pendant une seconde. En pratique, chaque point de mesure est réalisé une trentaine fois. Le ratio entre les intensités I_y et I_x est fixé à 2.2.

Sur la figure (4.14), on peut observer en haut la trace de $S_{x,z}$. On constate que pour $0 < \tau < T_{per}/2$, les molécules s'alignent périodiquement selon x. Sur la figure du milieu, on constate qu'il y a bien une symétrie entre les directions y et z car le signal est nul. Après la seconde impulsion, sur la figure du bas, on constate qu'il y a bien délocalisation planaire car la valeur de $(-S_{x,z} - S_{y,z}) \propto \langle \cos^2\theta_z \rangle - 1/3$ est négative. Sur la même figure, on peut observer en noir la courbe théorique permettant de reproduire les données expérimentales. En effet, certaines contraintes expérimentales doivent être prises en compte. L'effet de volume a également été pris en compte. Ceci s'explique par le fait que le profil transverse d'une impulsion n'est pas nul et au point focal, le faisceau a une largeur minimale ω_0, appelée beam-

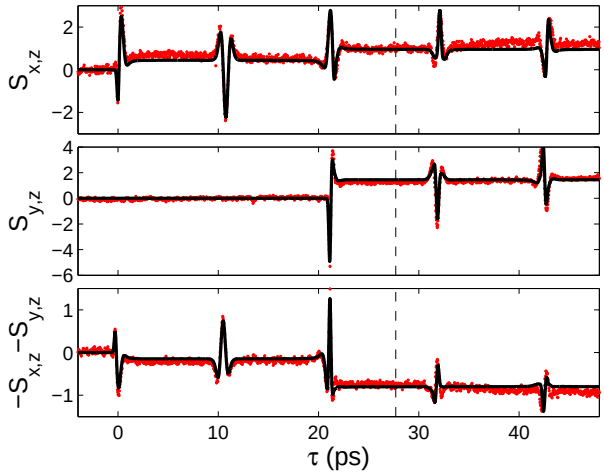


Fig. 4.14: Évolution des biréfringences au cours du temps. Les unités sont arbitraires. On constate sur la partie du bas qu'il y a bien délocalisation de la molécule pour $\tau > \frac{T_{per}}{2}$, c'est-à-dire après le contrôle par les deux impulsions. En rouge, la trace expérimentale mesurée et en noir la trace théorique. On notera le très bon accord théorie/expérience.

waist. Cette largeur spatiale s'accompagne d'une distribution transverse d'intensité, on a donc une relation liant l'intensité à la position (x, y). Le signal mesuré correspond donc en réalité à la réponse d'un échantillon représenté par une distribution volumique. L'intégrale suivante permet alors d'obtenir un signal théorique représentatif de l'effet de volume :

$$-S_{x,y} - S_{y,z} \propto \int \mathrm{d}^3\vec{r} g(I(\vec{r}))\left(\langle\cos^2\theta_z(I(\vec{r}))\rangle - 1/3\right), \tag{4.29}$$

avec g la fonction représentant la distribution spatiale d'intensité. Une base de donnée contenant l'évolution des valeurs moyennes des cosinus directeurs a été construite en faisant varier l'intensité I_x de la première impulsion avec un ratio $I_y/I_x = 2.2$ fixe et une température $T = 100$K. Pour reproduire la trace expérimentale à partir des données calculer numériquement, il suffit alors de sommer l'ensemble des signaux pondérés par la distribution transverse du champ qui donne une relation entre l'intensité et la position. De plus la mesure effectuée étant proportionnelle aux valeurs des observables, il convient d'effectuer un ajustement de l'amplitude de la courbe moyenne théorique obtenu en la multipliant par un facteur constant. Il est également nécessaire d'ajuster la largeur de la distribution, la largeur spatiale de l'impulsion n'est pas connu avec une très grande précision, il convient donc d'ajuster cette valeur. Le résultat final est en très bon accord avec les résultats expérimentaux. Cela permet de prouver la réalité expérimentale des états de délocalisation planaire et l'efficacité de la stratégie de contrôle dérivée précédemment.

4.6 Roues dentées quantiques

4.6.1 Construction de l'état roue dentée

Dans la section précédente, un état rotationnel délocalisé a été construit ainsi qu'une stratégie de contrôle simple pour l'atteindre. Dans la même idée, nous allons définir une méthode pour déterminer des états ayant une forme de roue dentée délocalisée dans un plan et tournant autour d'un axe orthogonal au plan de délocalisation. Basiquement, l'idée est une nouvelle fois basée sur la définition de la valeur moyenne d'une observable particulière. Il suffit ensuite de chercher l'état qui maximise ou minimise cette quantité. Comme il s'agit cette fois d'une évolution dynamique, on définit la valeur moyenne au cours du temps d'une observable dépendante du temps $\langle A\rangle(t)$ et on cherche à maximiser sa moyenne C sur une période rotationnelle. On considère que, sur ce laps de temps, seule la dynamique rotationnelle libre de la molécule agit et qu'il n'y a aucun champ pour perturber la dynamique. On note alors :

$$C = \frac{1}{T_{per}} \int_0^{T_{per}} \mathrm{d}t \langle A\rangle(t). \tag{4.30}$$

Pour déterminer l'observable à utiliser, imaginons que l'on cherche une forme de roue dentée dotée de n dents équidistantes tournant dans le plan (x, y). Pour pouvoir décrire la rotation dans le plan (x, y), il suffit d'utiliser l'opérateur de rotation $e^{-\mathrm{i}\,\omega t \hat{J}_z}$. En utilisant cet opérateur, on peut faire tourner une observable à la pulsation ω autour de l'axe z. Supposer que la roue possède n dents, signifie que la molécule est orientée le long de n axes tournant à la vitesse de la roue. Pour décrire l'orientation du système dans la direction x, on peut utiliser l'observable $\cos(n\theta_x)$. On définit alors l'observable dépendante du temps suivante :

$$\cos(n\theta_t) = e^{-\mathrm{i}\,\omega t \hat{J}_z} \cos(n\theta_x) e^{\mathrm{i}\,\omega t \hat{J}_z}. \tag{4.31}$$

La moyenne temporelle de cette observable permet de décrire l'orientation du système le long de n axes tournant à la vitesse ω autour de z.

Pour commencer le calcul, il faut projeter l'état cible $|\psi_c\rangle$ minimisant la quantité C dans la base propre de l'opérateur $\hat{J}^2$: $|\psi_c\rangle = \sum_{j=0}^{+\infty} \sum_{m=-j}^{j} c_{j,m} |j, m\rangle$. Effectuons le calcul sur un exemple simple pour illustrer nos propos et choisissons une roue à une dent. L'orientation le long de l'axe tournant est alors décrit par $\cos\theta_x$. Son expression dans la base des harmoniques sphériques est la suivante :

$$\cos\theta_x |j, m\rangle = -a_{j,m} |j, , m+1\rangle + a_{j,-m} |j+1, m-1\rangle + a_{j-1,-m-1} |j-1, m+1\rangle - a_{j-1,m-1} |j-1, m-1\rangle. \tag{4.32}$$

En développant l'expression de C, on a alors :

$$C = \frac{1}{T_{per}} \int_0^{T_{per}} \mathrm{d}t \sum_{j=0}^{+\infty} \sum_{m=-j}^{j} \sum_{j'=0}^{+\infty} \sum_{m'=-j'}^{j'} c^*_{j',m'} c_{j,m} \langle j', m' | e^{\mathrm{i}(B\hat{J}^2 - \omega \hat{J}_z)t} \cos\theta_x e^{-\mathrm{i}(B\hat{J}^2 - \omega \hat{J}_z)t} | j, m \rangle. \quad (4.33)$$

En utilisant l'expression des opérateurs de moment angulaire dans la base des harmoniques sphériques et en développant le calcul, on trouve :

$$\begin{aligned} C = \frac{1}{T_{per}} \int_0^{T_{per}} \mathrm{d}t \Bigg[& -\sum_{j=0}^{+\infty} \sum_{m=-j}^{j} a_{j,m} 2\Re(c^*_{j+1,m+1} c_{j,m}) \cos((2B(j+1)+\omega)t) \\ & -a_{j,m} 2\Im(c^*_{j+1,m+1} c_{j,m}) \sin((2B(j+1)+\omega)t) \\ & +\sum_{j=0}^{+\infty} \sum_{m=-j}^{j} a_{j,-m} 2\Re(c^*_{j+1,m-1} c_{j,m}) \cos((2B(j+1)-\omega)t) \\ & - a_{j,-m} 2\Im(c^*_{j+1,m-1} c_{j,m}) \sin((2B(j+1)-\omega)t) \Bigg]. \end{aligned} \quad (4.34)$$

Pour maximiser l'observable C, il suffit de choisir $\omega = \pm 2(J+1)$. Cela a pour effet d'annuler trois des termes composant l'intégrand mais, également, de maximiser un terme en le rendant indépendant du temps. Fixons par exemple $\omega = +2(J+1)$, l'expression de C se simplifie et on trouve :

$$C = -\sum_{j=0}^{+\infty} \sum_{m=-j}^{j} a_{j,m} 2\Re(c^*_{j+1,m+1} c_{j,m}), \quad (4.35)$$

la somme est alors indépendante de j car en choisissant $\omega = +2(j+1)$, la valeur de j est fixée. Les termes dépendant du temps dans la somme vont s'annuler car leurs périodes sont toutes multiples de la période fondamentale $\frac{\pi}{B}$. L'expression de $a_{j,m}$ est $\sqrt{\frac{(j+m+1)(j+m+3)}{(2j+1)(2j+3)}}$. Ce terme est maximum pour $m = j$, la valeur de m est alors fixée et la somme disparait. Les nombres j et m étant donnés, il reste à constater que le produit $|c^*_{j+1} c_j|$ est maximum en choisissant $c_{j+1} = c_j = \frac{1}{\sqrt{2}}$. L'état cible permettant de maximiser C est :

$$|\psi^{\pm}_{j,1}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(|j+1, \pm(j+1)\rangle + |j, \pm j\rangle \right), \quad (4.36)$$

avec la vitesse angulaire $\omega^{\pm}_{j,1} = E_{j+1} - E_j$. De la même façon, on peut définir un état roue dentée pour n'importe quelle valeur de n. Cet état est alors de la forme :

$$|\psi^{\pm}_{j,n}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(|j+n, \pm(j+n)\rangle + |j, \pm j\rangle \right), \quad (4.37)$$

où n correspond au nombre de lobes constituant la roue et où le signe permet de contrôler le sens de rotation de la roue. Sa vitesse de rotation est alors : $\omega_{j,n}^{\pm} = \dfrac{E_{j+n} - E_j}{n}$. Il est important de remarquer que ces états sont des combinaisons linéaires d'états planaires définis précédemment. L'origine de la rotation peut-être comprise de manière assez simple. Un état du type $|j, j\rangle$ est un état délocalisé dans le plan (x, y) dont la densité de probabilité associée a une forme de fleur avec j lobes (voir la figure (4.15)). La dynamique libre du système va uniquement modifier la phase de l'état. En réalisant une combinaison de deux états planaires, la phase de chacun évoluant à une vitesse différente, ces deux états vont interférer de sorte que la densité de probabilité ait une rotation dans le plan (x, y). Le moment angulaire associé à chacun des états composant la roue est orienté selon z dans la direction $z > 0$. Cette déduction vient de l'interprétation du nombre m qui correspond à la projection du moment angulaire $\overrightarrow{J}$ sur l'axe de quantification z. Les deux moments angulaires sont alors orientés le long du même axe. Qualitativement les deux paquets d'ondes vont tourner dans le plan de délocalisation et leurs interférences vont amener l'apparition de lobes qui tourneront dans ce même plan. On pourrait également imaginer un état roue tel que la phase de chaque composante de la roue évolue dans un sens opposé, le résultat est alors encore une roue mais cette fois de la forme :

$$|\tilde{\psi}_{j,n}^{\pm}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(|j, \pm j\rangle + |j + n, \mp(j + n)\rangle \right). \tag{4.38}$$

Le nombre de lobes est alors égal à $(2j - n)$ et le signe permet une nouvelle fois de contrôler le sens de rotation de la roue. Dans ce cas, les moments angulaires de chaque état sont orientés dans des directions opposées. Remarquons enfin que la combinaison de deux états roues ayant le même nombre de dents mais une vitesse de rotation opposée donne naissance à un état "oscillant". Imaginons pour cela, un état roue à deux dents, avec une combinaison linaire des états de rotation à droite et à gauche, c'est-à-dire de la forme :

$$|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(|\psi_{j,2}^{+}\rangle + |\psi_{j,2}^{-}\rangle \right) = \frac{1}{2}(|j, j\rangle + |j, j + 2\rangle + |j, -j\rangle + |j, -j - 2\rangle). \tag{4.39}$$

La molécule s'aligne alternativement dans une direction puis dans une autre direction orthogonale sans mouvement de rotation comme pour l'exemple de la figure (4.15)(haut). En revanche la figure (4.15)(bas) représente l'évolution de la densité de probabilité angulaire d'un état roue.

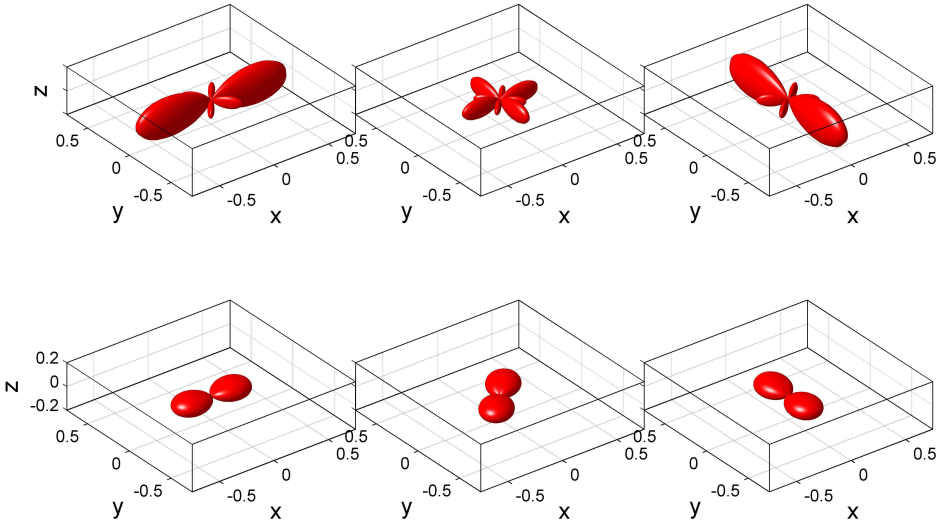


Fig. 4.15: Densité de probabilité des états $\frac{1}{\sqrt{2}}(|2,2\rangle+|4,4\rangle)$ et $\frac{1}{2}(|2,2\rangle+|4,4\rangle+|2,-2\rangle+|4,-4\rangle)$ respectivement en haut et en bas. Les images de gauche à droite correspondent à $t=0$, $t=\frac{T_{2,2}}{8}$ et $t=\frac{T_{2,2}}{4}$ avec $T_{2,2}=\frac{2\pi}{\omega_{2,2}}$.

4.6.2 Stratégies de contrôle

Pour pouvoir atteindre de tels états, il faut remarquer que le champ laser effectif (la somme de tous les champs perçus par la molécule) doit être linéaire. En effet, avec un champ polarisé circulairement, la phase relative des composantes x et y est de $\pi/2$ et dans l'Hamiltonien (4.11), le terme croisé $\cos\theta_x \cos\theta_y$ est absent. Or cet opérateur couple les espaces pair et impair entre eux (voir l'annexe 8.6), ce qui n'est pas le cas des opérateurs $\cos^2\theta_i$ avec $i = \{x, y, z\}$. Ces deux espaces sont notés $\pm$ et leurs états de bases sont notés $\psi_\pm = \frac{1}{\sqrt{2}}(|j,m\rangle \pm |j,-m\rangle)$. A température nulle, l'état initial est l'état fondamental $|\psi_0\rangle = |j = 0, m = 0\rangle$. Il appartient à l'espace pair tandis que l'état roue lui est une superposition d'états appartenant aux deux sous-espaces. Il faut donc impérativement que l'Hamiltonien couple les espaces pair et impair. Dans [76], nous avons utilisé une stratégie de contrôle adiabatique composée de deux champs polarisés circulairement respectivement gauche et droite. Nous ne détaillerons pas ici la méthode mais il faut remarquer que le champ effectif est un champ polarisé linéairement tournant dans le plan (x, y) à une fréquence de l'ordre de grandeur des fréquences rotationnelles (voir les références [77, 78, 79]). Nous avons également envisagé une approche par contrôle optimal à l'aide d'un algorithme monotone avec deux champs polarisés linéairement selon les directions x et y. De très bons résultats ont été obtenus. D'autres stratégies de contrôle ont été développées pour pouvoir générer une roue moléculaire. Une méthode de contrôle simple consiste à pré-aligner la molécule puis à envoyer une impulsion polarisée linéairement à 45° de l'axe d'alignement. Cela a pour effet d'orienter le moment angulaire, c'est-à-dire que l'état de la molécule est alors une superposition cohérente d'états vérifiant $m > 0$ ou $m < 0$ [73, 80]. L'effet de rotation de la densité de probabilité obtenu est faible dans le sens où après un temps court cette effet n'est plus visible et réapparait de manière périodique autour des régimes de transitoires.

4.6.3 Extension au cas des molécules symétriques et asymétriques

Pour l'instant, seuls des états roues dentées pour les molécules linéaires ont été définis. Il est possible de faire le même raisonnement pour des molécules toupies symétrique et asymétrique. En utilisant l'expression des observables $\cos\theta_{i,j}$ dans la base des matrices de Wigner, on peut effectuer un calcul similaire. On trouve alors les états roues suivants :

$$|\psi^{\pm}_{j,n}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}\left(|j+n, 0, j+n\rangle + |j, 0, j\rangle\right). \tag{4.40}$$

La forme de ces états peut se comprendre assez facilement. Les états $|j, 0, j\rangle$ sont des états délocalisés. En effet, en se référant à la figure (4.16), on comprend que si $k = 0$, alors le moment angulaire est

orthogonal à l'axe moléculaire Z. De plus, si $m = j$, alors le moment angulaire est colinéaire à l'axe du laboratoire z. L'axe moléculaire Z est donc délocalisé dans le plan (x, y). Les états $|j, j, 0\rangle$ sont également des états délocalisés, l'axe Z est colinéaire à $\overrightarrow{J}$ car $k = j$, de plus le moment angulaire est orthogonal à l'axe z car $m = 0$. Des états roues ne peuvent pas être construis à partir de ce genre d'états car les moments angulaires ne sont pas colinéaires et il n'y a pas de mouvement global de rotation du paquet d'onde.

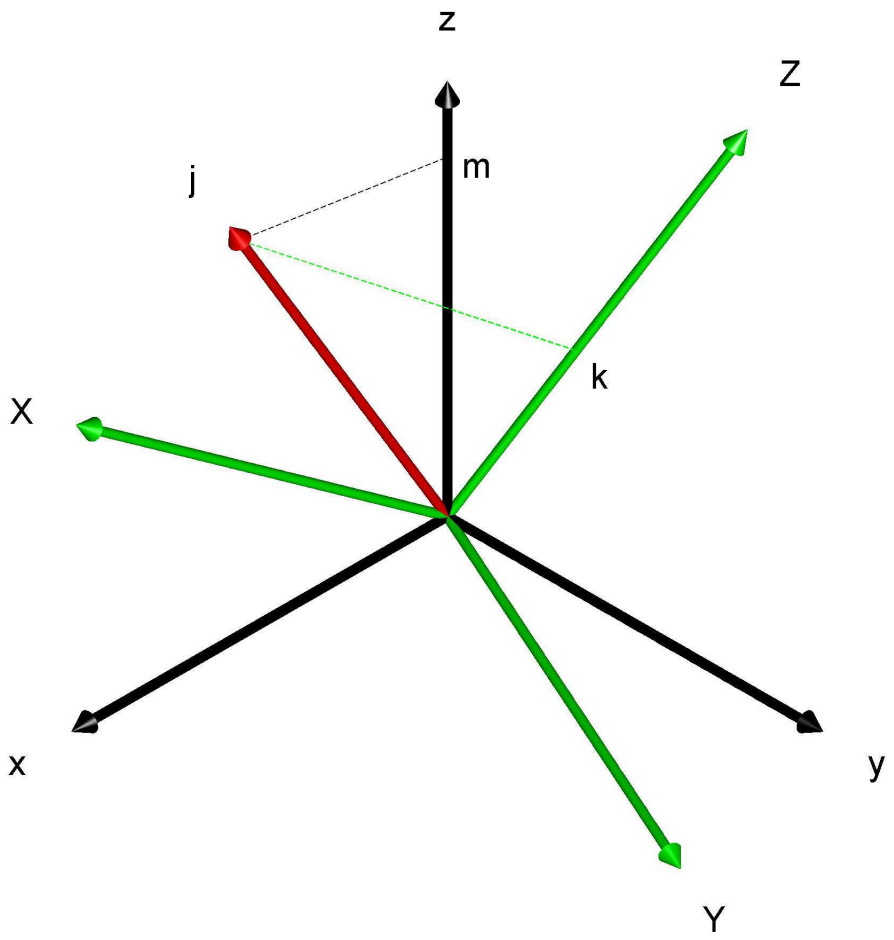


Fig. 4.16: Représentation de l'interprétation des nombres quantiques k et m. k correspond à la projection de $\overrightarrow{J}$ sur l'axe moléculaire Z et m à la projection sur l'axe du laboratoire z. Si $k = 0$ et $m = j$ alors l'axe moléculaire Z est délocalisé et $\overrightarrow{J}$ est orienté selon z. Si $k = j$ et $m = 0$, l'axe moléculaire Z est délocalisé ainsi que le moment cinétique $\overrightarrow{J}$.

L'extension aux molécules asymétriques est moins évidente. Pour des molécules linéaires ou symétriques, le mouvement est périodique de période $\frac{\pi}{B}$ car cette période est commune à toutes les fréquences associées aux transitions rotationnelles. Cependant, pour les molécules asymétriques, il n'y a pas de période commune à cause de l'asymétrie entre les moments d'inertie ($A \neq B \neq C$). Il n'est plus possible de réaliser l'intégration de la valeur moyenne de l'observable sur un temps fini, il faut donc la réaliser

sur un temps infini. On doit alors chercher l'état qui maximise l'observable suivante :

$$C = \lim_{T\to\infty} \frac{1}{T} \int_0^T \mathrm{d}t \langle A \rangle(t). \tag{4.41}$$

En pratique, ce calcul est numériquement impossible. L'idée est plutôt d'utiliser une méthode pour éliminer les termes dépendant du temps de l'opérateur suivant :

$$A(t) = \exp(\mathrm{i}\, H_0 t) \exp(\mathrm{i}\, \omega \hat{J}_z) \cos n\theta \exp(-\mathrm{i}\, \omega \hat{J}_z) \exp(-\mathrm{i}\, H_0 t) \tag{4.42}$$

où H_0 correspond à l'Hamiltonien libre décrivant la rotation d'un molécule asymétrique (section (4.3.1)). Après, il suffit de diagonaliser l'opérateur résultant et déterminer le vecteur propre associé à la valeur propre maximale. L'algorithme utilisé pour ce calcul peut se résumer de la manière suivante :

1 : $\widetilde{H_0} = V^{-1} H_0 V$ avec $\widetilde{H_0}|J,\tau,M\rangle = \lambda_{J,\tau,M}|J,\tau,M\rangle$: Diagonalisation de H_0

2 : $\widetilde{\cos\theta} = V^{-1} \cos\theta V$: Passage dans la base propre de H_0

3 : $A = \begin{cases} A_{ij} = 1 \text{ si } \widetilde{\cos\theta}_{ij} \neq 0 \\ 0 \quad \text{sinon} \end{cases}$

Création d'une matrice constituée de 0 et de 1, 1 si l'élément (i,j) de $\widetilde{\cos\theta}$ est non-nul

4 : $\widetilde{U_0}(t=1) = e^{-\mathrm{i}\,\widetilde{H_0}}$

5 : $B = \widetilde{U_0} A \widetilde{U_0}^{\dagger}$: Propagation de A

6 : $C = \begin{cases} C_{ij} = \widetilde{\cos\theta_{ij}} \text{ si } B_{ij} = 1 \\ 0 \quad \text{sinon} \end{cases}$

Si $B_{ij} = 1$ ce la signifie que cette élément est indépendant du temps

7 : $D_2 = V_2^{-1} C V_2$: Diagonalisation de C

8 : $\lambda_{max} = \max[\mathrm{diag}[D_2]]$ et $|\widetilde{\psi_c}\rangle = V_2(\lambda_{max})$: Récupération de la valeur propre maximale et de son vecteur propre associé

9 : $|\psi_c\rangle = V|\widetilde{\psi_c}\rangle$: Passage dans la base $|J,K,M\rangle$

Les états roues peuvent alors être définis comme suit :

$$|\psi^{\pm}_{j,n}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(|j+n, \pm(j+n), j+n\rangle + |j, \pm j, j\rangle \right), \tag{4.43}$$

dans la base des états $\{|j,\tau,m\rangle\}$. Le nombre n décrit encore une fois le nombre de dents tandis que le signe permet de choisir le sens de rotation de la roue. Il convient de remarquer que de tels états exhibent une rotation périodique car les deux états composants la roue sont des états propres de

l'Hamiltonien rotationnel et il existe forcément une période d'évolution commune aux deux états. Ceci aurait été génériquement faux si la roue avait été constituée de trois états propres.

Qualitativement, on peut comprendre pourquoi cette état roue existe. Si on vérifie $m = j$, cela signifie que $\overrightarrow{J}$ est parallèle à l'axe du laboratoire z. De plus si $\tau = j$, cela signifie que $|k_A| = j$ et $|k_C| = 0$ et que le moment angulaire est orthogonal à Z et parallèle à l'axe moléculaire X (voir section (4.3)). Les états de la forme $|j, \pm j, j\rangle$ sont donc délocalisés dans le plan (x, y) et leur composition donne un état roue dentée car leurs moments angulaires sont colinéaires.

4.7 Conclusion

Nous avons montré dans ce chapitre comment mettre en forme le champ électrique d'un laser pour contrôler efficacement la dynamique rotationnelle de molécules en phase gazeuse. Ce travail pourra se poursuivre dans différentes directions. De manière générale, il serait intéressant de pouvoir implémenter expérimentalement les solutions optimales que nous avons calculées à l'aide de la technique du pulse-shaping. Le développement d'un algorithme numérique tenant compte de contraintes spectrales rend ce projet tout-à-fait réalisable. Une première étape pourrait être la production d'états roues dentées. Nous devons pour cela travailler à basse température car ces états ne sont pas du tout robustes vis-à-vis de la température. Celle-ci va induire la superposition incohérente de nombreux états roues avec un nombre de lobes et des vitesses de rotation différentes, ce qui détruira complètement l'effet de rotation classique. D'autres perspectives à plus long terme sont basées sur l'utilisation des états planaires ou roue dans différentes applications comme l'adsorption de molécules sur une surface [81] ou la déflection de jets moléculaires [72].

Chapitre 5

Contrôle optimal des condensats de Bose-Einstein

5.1 Introduction

Ce chapitre a pour but d'appliquer les techniques de contrôle optimal (géométrique et numérique) à la création de superposition quantique d'états dans une jonction Josephson bosonique. Après un bref rappel sur le modèle utilisé, nous utiliserons le contrôle géométrique dans un modèle semi-classique valable pour un grand nombre de particules, puis les algorithmes monotones sur le système quantique initial. Le but des deux contrôles sera de produire un état dit chat de Schrödinger soit en temps minimum pour le contrôle géométrique, soit en un temps fixe et énergie minimum pour le contrôle avec des algorithmes numériques.

5.2 Introduction du modèle

Le modèle décrivant une jonction Josephson bosonique dans un condensat de Bose-Einstein est relativement simple. En revanche, la construction rigoureuse du modèle depuis les équations de base est fastidieuse. Pour cette raison, dans cette section, nous nous contenterons de construire le modèle de manière simplifiée et de donner des explications qualitatives aidant à la compréhension de la partie concernant le contrôle. Le lecteur intéressé trouvera dans la référence [82] la dérivation complète du modèle utilisé.

Avant de débuter notre étude, commençons par rappeler ce qu'est l'effet Josephson dans un milieu supraconducteur. Cet effet a été proposé en 1962 par Josephson dans [83] et vérifié expérimentalement par Anderson dans [84]. Le système physique exhibant cet effet, nommé jonction Josephson, est celui de la figure (5.1). Cette jonction est constituée de trois parties accolées les unes aux autres. Il y a deux milieux supraconducteurs et un milieu isolant entre les deux supraconducteurs. L'effet décrit par Josephson est en fait divisible en deux effets :

- effet Josephson continu : en l'absence de tension aux bornes du système, un courant continu proportionnel à la phase aux bornes de la jonction est observé.

– effet Josephson alternatif : en présence d'une tension non nulle aux bornes, le système présente un courant alternatif, les charges se déplacent alternativement d'un milieu supraconducteur à l'autre.

L'interprétation de ces effets correspond à une manifestation macroscopique de la condensation de paires de Cooper sur l'état fondamental de la jonction. Ces effets non intuitifs sont utilisés dans le domaine de la métrologie car l'effet continu est sensible au champ magnétique et permet de mesurer des champs magnétiques précisément (par exemple les SQUIDS [85]) et l'effet alternatif permet, quant à lui, de faire des conversions tension courant alternatif (et vice versa) efficacement.

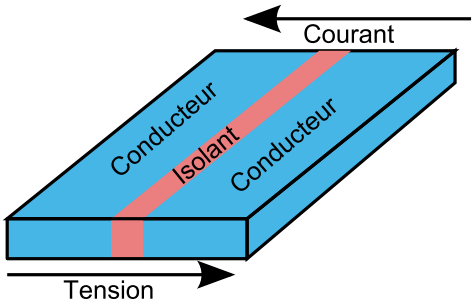


Fig. 5.1: Jonction Josephson constituée de deux milieux supraconducteurs séparés par un milieu isolant. Suivant la tension appliquée, les charges se localisent dans un des deux milieux supraconducteurs ou bien oscillent entre les deux. Cela correspond à un courant continu ou alternatif.

L'origine de cet effet étant la condensation des paires de Cooper qui sont des bosons, l'idée de reproduire un effet similaire avec d'autres types de bosons est alors apparue, notamment avec des atomes bosoniques froids piégés dans un double puits de potentiel [1] [86, 87]. Ce potentiel a une forme correspondant à celui de l'effet Josephson électronique, la barrière séparant les deux puits pouvant être vue comme l'isolant de la jonction tandis que les deux puits correspondraient aux supraconducteurs.

Alors que ces effets de condensation ont été prédits dès 1925 par Bose et Einstein, de tels condensats n'ont été expérimentalement obtenus qu'en 1995 pour le rubidium et le sodium. Dans les années qui ont suivies, de nombreuses autres espèces atomiques ont été condensées. Typiquement, ces expériences nécessitent des températures très faibles de l'ordre de $10-100$nK et des densités de l'ordre de 10^{13}cm^{-3}, ce qui est très faible par rapport aux densités typiques d'un gaz dans des conditions de pression et de température normales (de l'ordre de 10^{19}cm^{-3}). Cette dilution est nécessaire pour pouvoir observer des effets de cohérence et limiter les interactions entre les particules. Ces effets ont été observés

1. Il est important de préciser qu'il existent deux types de jonction Josephson bosonique. la première est dites à configuration externe. Les atomes sont piégés par un potentiel harmonique qui correspond au lieu de croisement de deux faisceaux laser, l'interaction des atomes avec le champ laser résultant se fait via la polarisabilité de l'atomes car le champ laser est choisi tel qu'il soit non résonant avec les niveaux électroniques des atomes. Le second type est dit à configuration interne. Les atomes sont piégés par un champ magnétique et les atomes condensent sur les deux niveaux hyperfins correspondant au moment angulaire totale de l'électron (la dégénérescence des niveaux hyperfins est levée par le couplage du moment angulaire totale de l'électron $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$ avec le spin nucléaire $\vec{I}$) le plus externe de l'atome.

expérimentalement en 2005 [88, 89]. Dans les supraconducteurs, les courants sont des déplacements de porteurs de charge, l'analogue du courant dans l'effet Josephson bosonique va donc être le déplacement des atomes (bosoniques) entre les puits de potentiel du piège.

5.2.1 Modèle quantique

Le phénomène physique à décrire étant clarifié, nous devons maintenant introduire le modèle décrivant la dynamique du système. De nombreuses références permettant de construire le modèle et décrivant les condensats de Bose-Einstein sont données dans [90, 82].

L'Hamiltonien décrivant un système de bosons interagissant dans un potentiel externe s'écrit :

$$H = \int \mathrm{d}\vec{r} \left(-\frac{\hbar^2}{2m} \hat{\Psi}^\dagger \nabla^2 \hat{\Psi} + \hat{\Psi}^\dagger V_{ext} \hat{\Psi} \right) + \int \mathrm{d}\vec{r} \mathrm{d}\vec{r}' \left(\frac{g}{2} \hat{\Psi}^\dagger \hat{\Psi}^\dagger \hat{\Psi} \hat{\Psi} \right), \tag{5.1}$$

avec V_{ext} le potentiel en forme de double puits (le potentiel externe) et g une constante de couplage (la longueur de diffusion), tandis que $\hat{\Psi}$ et $\hat{\Psi}^\dagger$ correspondent aux opérateurs de champ bosoniques qui décrivent les taux d'occupation des différents modes du système.

Le couplage entre les deux puits a pour effet de scinder en deux le niveau fondamental. Pour des excitations faibles et des températures très faibles, on peut considérer que ces deux états sont découplés du reste du système. C'est ce que l'on nomme l'approximation des deux modes. Ces deux états sont notés Φ_g et Φ_e avec respectivement g correspondant à l'état fondamental (ground-state) et e correspondant à l'état excité. Ces deux états sont pair et impair. Il est plus pratique de faire un changement de base de sorte que les états de base décrivent la localisation dans les puits. On note alors : $\Phi_1 = \frac{1}{\sqrt{2}} (\Phi_g + \Phi_e)$ et $\Phi_2 = \frac{1}{\sqrt{2}} (\Phi_g - \Phi_e)$.

Dans l'approximation des deux modes, l'opérateur $\hat{\Psi}$ peut s'écrire comme $\hat{\Psi} = \hat{a}_1 \Phi_1 + \hat{a}_2 \Phi_2$. En remplaçant cette expression dans l'équation (5.1), on trouve :

$$H = \chi \frac{\left(\hat{a}_1^\dagger \hat{a}_1 - \hat{a}_2^\dagger \hat{a}_2 \right)^2}{4} + \delta \frac{\left(\hat{a}_1^\dagger \hat{a}_2 - \hat{a}_2^\dagger \hat{a}_1 \right)}{2} - \Omega \frac{\left(-\mathrm{i}\, \hat{a}_1^\dagger \hat{a}_2 + \hat{a}_2^\dagger \hat{a}_1 \right)}{2}, \tag{5.2}$$

où a_1, $a_1^\dagger$, a_2 et $a_2^\dagger$ sont les opérateurs de création et d'annihilation de particules dans les deux modes. Les quantités χ, δ et ω dépendent de l'ensemble des particules et prennent les formes suivantes :

$$\begin{cases} \chi &= \frac{1}{2}(U_1 + U_2) - U_{12} \\ \delta &= E_2 - E_1 + \frac{1}{2}(N-1)(U_2 - U_1) \\ \Omega &= -\int \mathrm{d}\vec{r} \frac{\hbar^2}{2m} (\nabla \varphi_1(\vec{r}) \nabla \varphi_2(\vec{r})) + \varphi_1(\vec{r}) \varphi_2(\vec{r}) V_{ext} \end{cases}, \tag{5.3}$$

avec :

$$\begin{cases} E_i &= \int \mathrm{d}\vec{r}\frac{\hbar^2}{2m}(\nabla\varphi_i(\vec{r}))^2 + \varphi_i^2(\vec{r})V_{ext} \\ U_i &= g\int \mathrm{d}\vec{r}\varphi_i^4(\vec{r}) \end{cases}, \tag{5.4}$$

E_i sont les énergies des deux niveaux constitutif du condensat. V_{ext} est la forme du potentiel piégeant les atomes. g correspond à la longueur de diffusion. U_i décrit les interactions des bosons d'un mode avec les bosons du mêmes mode. Le terme U_{12} qui apparait dans χ correspond à l'interaction des bosons d'un mode avec les bosons de l'autre mode (ce terme est non nul seulement dans le cas d'un condensat sur deux niveaux hyperfins). Le terme χ décrit alors l'interaction des atomes entre eux tandis que le terme δ est relié à la symétrie du puits. Si le potentiel est symétrique alors les énergies E_i relatives à la localisation dans chacun des puits sont identique et la valeur de δ est nulle. Le contrôle de la dynamique se fait alors au travers du contrôle de la forme du potentiel et donc au travers de Ω, de plus dans la suite on considèrera un potentiel symétrique de sorte que δ soit nul et qu'il ne dépende pas de la forme du puits.

Lorsque le nombre d'atomes dans le puits est conservé, on peut utiliser les transformations de Schwinger pour obtenir l'Hamiltonien suivant :

$$H = \chi J_z^2 + \delta J_z - \Omega(t)J_x \tag{5.5}$$

avec $J_z = (\hat{a}_1^\dagger\hat{a}_1 - \hat{a}_2^\dagger\hat{a}_2)/2$. On reconnait l'opérateur nombre $\hat{a}_i^\dagger\hat{a}_i$, J_z décrit donc la demi-différence de population entre les deux puits. Les opérateurs J_x et J_y sont définis par les expressions : $J_x = (\hat{a}_1^\dagger\hat{a}_2 - \hat{a}_2^\dagger\hat{a}_1)/2$ et $J_y = -\mathrm{i}(\hat{a}_1^\dagger\hat{a}_2 + \hat{a}_2^\dagger\hat{a}_1)/2$.

En l'absence de dissipation et de perte, le nombre d'atomes dans le piège est constant et la dynamique du système peut être décrite par l'Hamiltonien (5.5). L'état du système peut alors s'exprimer dans la base de Fock $\{|n\rangle\}$ avec $n \in \left[-\frac{N}{2}, \frac{N}{2}\right]$, N correspondant au nombre d'atomes piégés dans l'ensemble des deux puits. Les opérateurs J_i correspondent aux composantes usuelles du moment angulaire. L'opérateur J_z s'exprime donc de manière standard dans la base de Fock : $J_z|n\rangle = n|n\rangle$. Le nombre n peut être interprété comme la différence de population entre les deux puits. Il faut remarquer que lorsque le contrôle Ω est nul et que le puits est symétrique ($\delta = 0$) alors les niveaux sont dégénérés deux fois. Si le puits devient asymétrique $\delta \neq 0$, la dégénérescence est levée. En effet on a $E_{N/2} - E_{-N/2} = -N\delta$.

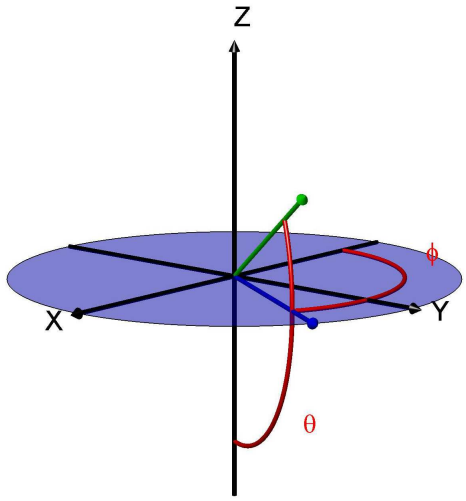


Fig. 5.2: Définition des angles θ et φ décrivant la position d'un point sur la sphère de Bloch.

5.2.2 Modèle semi-classique

L'état du système à l'équilibre correspond en général à une superposition d'états propres de la base de Fock. Cet état possède des propriétés bien particulières, c'est un état dit cohérent [91, 92] (cet état est également appelé état atomique cohérent ou état quasi-classique). La valeur moyenne quantique d'une observable X lorsque le système est sur un état cohérent suit approximativement l'évolution de la variable classique associée x. On vérifie alors $\langle X\rangle(t) \approx x(t)$.

On définit les coordonnées sphériques définis par les angles (θ, φ) comme respectivement l'angle entre l'axe $-z$ et l'axe courant et l'angle entre l'axe $-x$ et l'axe courant (voir figure (5.2)). L'état cohérent $|\theta, \varphi\rangle$ s'écrit dans la base de Fock comme :

$$|\theta, \varphi\rangle = \sum_{n=-N/2}^{N/2} \begin{pmatrix} N \\ n + N/2 \end{pmatrix}^{1/2} \frac{\alpha^{n+N/2}}{(1+|\alpha|^2)^{N/2}} |n\rangle. \tag{5.6}$$

avec $\alpha = e^{\mathrm{i}\,\varphi(N/2+n)} \sin^{N/2+n}(\theta/2) \cos^{N/2-n}(\theta/2)$. Lorsque $\theta = 0$, on a donc $z = -\dfrac{N}{2}$ et tous les atomes sont dans un puits. Pour $\theta = \pi$, $z = \dfrac{N}{2}$ et tous les atomes sont dans le second puits. Pour les opérateurs de moment angulaire, on a : $\langle J_i\rangle = i$, $\forall i \in \{x, y, z\}$ lorsque le système est dans un état cohérent. Avec la définition des angles (θ, φ), la valeur moyenne de l'opérateur de moment angulaire s'écrit alors : $\langle \overrightarrow{J} \rangle = N(\sin\theta\cos\varphi, \sin\theta\sin\varphi, -\cos\theta)/2$. Pour déterminer la dynamique décrivant l'évolution des valeurs moyennes des observables, on commence par utiliser le point de vue de Heisenberg qui décrit l'évolution temporelle des opérateurs. D'après ce point de vue, l'évolution de la valeur moyenne d'une

observable A s'écrit :

$$\mathrm{i}\,\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\langle A\rangle = \langle [H,A]\rangle + \mathrm{i}\,\frac{\partial}{\partial t}\langle A\rangle. \tag{5.7}$$

En supposant que l'état initial du système est un état cohérent, le système vérifie $\langle J_x\rangle(t) \approx x(t)$, $\langle J_y\rangle(t) \approx y(t)$ et $\langle J_z\rangle(t) \approx z(t)$. A partir de l'équation (5.7) et en utilisant $\langle J_i J_j\rangle = \langle J_i\rangle\langle J_j\rangle = x_i x_j$ (car le système est dans un état cohérent à l'instant initial, ensuite sous l'influence de la dynamique, l'état cohérent tend à être détruit et cette approximation n'est plus valable), on obtient la dynamique suivante :

$$\begin{pmatrix}\dot{x}\\ \dot{y}\\ \dot{z}\end{pmatrix} = \delta\begin{pmatrix}-y\\ z\\ 0\end{pmatrix} + 2\chi\begin{pmatrix}-yz\\ xz\\ 0\end{pmatrix} - \Omega(t)\begin{pmatrix}0\\ -z\\ y\end{pmatrix}. \tag{5.8}$$

La dynamique du système étant unitaire, elle se déroule sur une sphère de rayon fixe. On introduit un changement de coordonnées pour passer en coordonnées sphériques (θ,φ). Les angles utilisés sont les mêmes que ceux utilisés pour définir les états cohérents. La dynamique s'écrit alors :

$$\begin{pmatrix}\dot{\theta}\\ \dot{\varphi}\end{pmatrix} = \frac{\chi N}{2}\begin{pmatrix}\omega\sin\varphi\\ \Delta + 2\cos\theta + \omega\cot\theta\cos\varphi\end{pmatrix}, \tag{5.9}$$

avec $\Delta = \dfrac{2\delta}{\chi N}$ et $\omega = \dfrac{2\Omega}{\chi N}$. D'un point de vue semi-classique, l'état du système est assimilé dans ces coordonnées à un point. En revanche, d'un point de vue quantique, l'état du système peut être visualisé sur la boule de Bloch comme une distribution définie par :

$$P(\theta,\varphi) = |\,\langle\theta,\varphi|\psi\rangle\,|^2. \tag{5.10}$$

Cette distribution décrit la densité de probabilité de trouver le système sur un point de coordonnées (θ,φ). Elle est tracée sur la sphère à partir de l'ensemble des projections de l'état du système sur les états cohérents. Elle est centrée en (θ,φ) et la distribution radiale est gaussienne. La largeur de cette distribution sur la sphère de rayon $\dfrac{N}{2}$ est $\sigma = \sqrt{N}$, c'est-à-dire que lorsque le nombre d'atomes N augmente, la largeur de la distribution augmente moins vite que le rayon de la sphère, l'état cohérent se localisant de plus en plus autour du point de coordonnées (θ,φ).

Pour la suite, il est nécessaire de faire quelques calculs préliminaires. Il faut notamment déterminer la position des séparatrices du système ainsi que la position des points fixes. Pour ces derniers, il suffit

de chercher les coordonnées (θ, φ) tel que $(\dot{\theta}, \dot{\varphi}) = (0, 0)$, on trouve :

$$\begin{cases} \left(\theta = \frac{\pi}{2}, \varphi = 0\right) \\ \left(\theta = \frac{\pi}{2}, \varphi = \pi\right) \\ \left(\theta = \arcsin\left(\frac{\omega}{2}\right), \varphi = \pi\right) \\ \left(\theta = \pi - \arcsin\left(\frac{\omega}{2}\right), \varphi = \pi\right) \end{cases} . \tag{5.11}$$

Le premier jeu de coordonnées correspond à un point fixe stable, le second est un point fixe instable si $\omega < 2$ et les deux derniers points sont stables et n'existent que si $\omega \leq 2$.

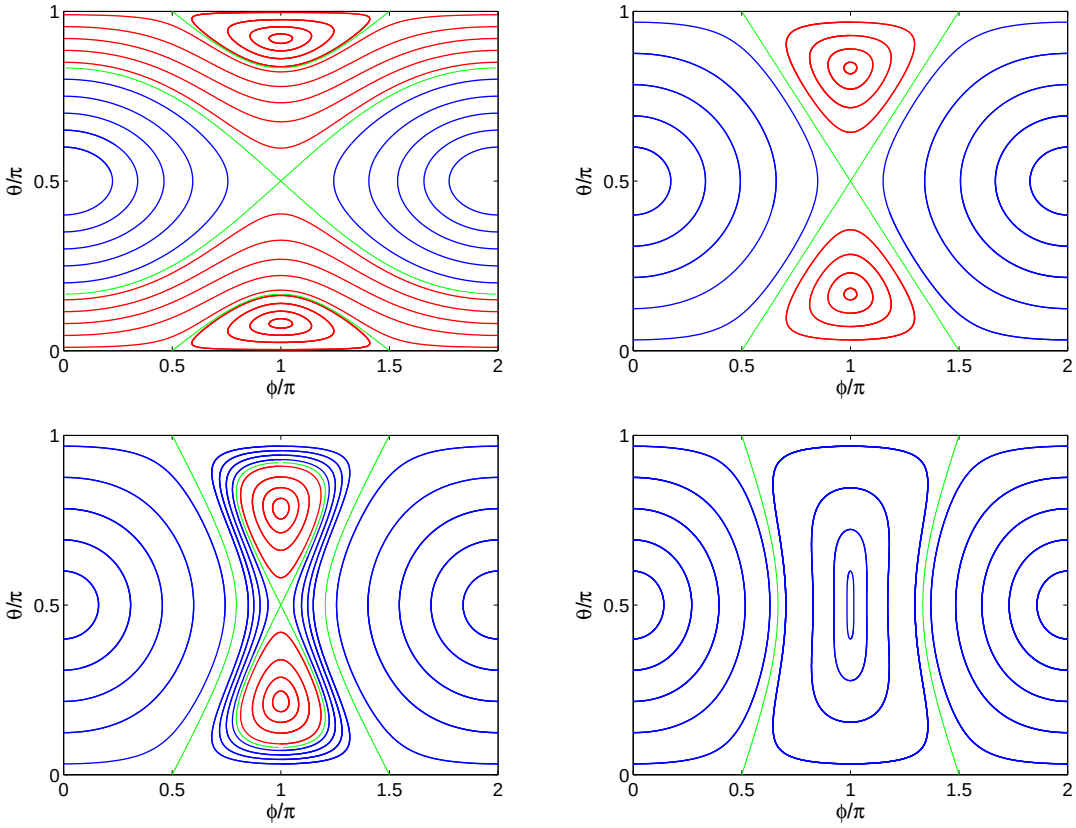


Fig. 5.3: Trajectoires possibles sur la sphère de Bloch pour les quatre cas de figure possibles à ω fixe. De gauche à droite et de bas en haut : $\omega = 0.5 < 1$, $\omega = 1$, $1 < \omega = 1.25 = 1 =< 2$ et $\omega = 2$. En vert, on peut distinguer les trajectoires dites séparatrices, en rouge les trajectoires conduisant à une asymétrie permanente de population entre les deux puits et en bleu, les trajectoires amenant à une inversion périodique des populations entre les deux puits. Notons que le nombre de points fixes change entre les trois premières figures et la dernière, il passe de quatre à deux.

Considérons le point instable et calculons l'équation de la séparatrice passant par ce point. L'énergie du système en ce point est $H = \frac{N\Omega}{2}$. Cette énergie étant conservée le long de la trajectoire, on peut alors écrire :

$$\frac{N\Omega}{2} = \frac{N^2\chi}{4}\cos^2\theta - \frac{N\Omega}{2}\sin\theta\cos\varphi. \tag{5.12}$$

On trouve alors la séparatrice suivante :

$$\varphi = \arccos\left[\left(1 - \frac{1}{\omega}\cos^2\theta\right)\frac{1}{\sin\theta}\right]. \tag{5.13}$$

Cette séparatrice n'existe que si $\omega < 2$. Par la suite, une seconde trajectoire cette fois passant par les pôles sera également utile. Par abus de langage, nous l'appellerons souvent séparatrice même si elle ne sépare pas des trajectoires ayant des comportements différents. L'énergie aux pôles est donnée par :

$$H = \frac{N^2\chi}{4} = \frac{N^2\chi}{4}\cos^2\theta - \frac{N\Omega}{2}\sin\theta\cos\varphi, \tag{5.14}$$

on obtient alors :

$$\varphi = \arccos\left(\frac{\sin\theta}{\omega}\right). \tag{5.15}$$

Cette description des différents comportements de la dynamique en fonction de la valeur de ω sera utile dans la suite pour construire la solution en temps minimum permettant de générer une superposition macroscopique d'états.

5.2.3 Information de Fisher

Pour la suite, il est également utile d'introduire l'information de Fisher. Elle se définit comme étant égale à quatre fois la valeur propre maximale de la matrice de cohérence :

$$F_Q = 4\max\left(\Delta\overrightarrow{J}\right)^2, \tag{5.16}$$

avec :

$$\left(\Delta\overrightarrow{J}\right)^2 = \begin{pmatrix} \langle J_x^2\rangle - \langle J_x\rangle^2 & \langle J_xJ_y\rangle - \langle J_x\rangle\langle J_y\rangle & \langle J_xJ_z\rangle - \langle J_x\rangle\langle J_z\rangle \\ \langle J_xJ_y\rangle - \langle J_x\rangle\langle J_y\rangle & \langle J_y^2\rangle - \langle J_y\rangle^2 & \langle J_yJ_z\rangle - \langle J_y\rangle\langle J_z\rangle \\ \langle J_xJ_z\rangle - \langle J_x\rangle\langle J_z\rangle & \langle J_yJ_z\rangle - \langle J_y\rangle\langle J_z\rangle & \langle J_z^2\rangle - \langle J_z\rangle^2 \end{pmatrix}. \tag{5.17}$$

Plus la valeur propre maximale de cette matrice est grande, plus l'état du système est une superposition cohérente d'états. Cette quantité appartient à $\left[N, N^2\right]$. Pour N^2, l'état du système est un état de type $|\text{chat}\rangle$. C'est précisément ce type d'état que l'on va chercher à générer par la suite. Parmi les états chats, le plus connu est l'état dit NOON. Il correspond à une superposition quantique d'états où tous les atomes sont dans un puits pour l'un des états et tous les atomes sont dans l'autre puits pour l'autre état. Dans la base des deux modes, il se note $\frac{1}{\sqrt{2}}\left(|N,0\rangle + |0,N\rangle\right)$ d'où l'appellation état NOON et il se note $\frac{1}{\sqrt{2}}\left(|-N/2\rangle + |N/2\rangle\right)$ dans la base de Fock. Notre but est maintenant de déterminer une

séquence de contrôle pour atteindre ce type d'états en temps minimum.

Brièvement les états de type chats dans les condensats à deux modes ont un intérêt très grand pour le monde de la métrologie. Le fait d'avoir une superposition d'état dans chaque puit du potentiel correspond dans une certaine mesure au fait d'avoir un faisceau laser dans un interféromètre. Si l'un des deux puits est perturbé par l'objet à mesurer, le déphasage relatif entre les deux composantes va être modifié. Cette modification sera mesurable expérimentalement et permettra de remonter à la quantité à mesurer. Pour plus de détails on peut se référer aux articles suivants [93, 94, 95]. Notamment l'article [93] montre comment le terme non linéaire χJ_z^2 permet de gagner en précision sur la mesure.

5.3 Contrôle optimal d'une superposition quantique macroscopique

5.3.1 Contrôle optimal géométrique

L'objectif est désormais de construire une séquence de contrôle minimisant le temps pour générer une superposition d'états macroscopique. Le modèle que l'on considère est conservatif, il n'y a pas de dissipation or expérimentalement cette dernière peut se révéler être très néfaste. Elle se manifeste par un effet de décohérence mais aussi par une non conservation du nombre d'atomes dans le piège, il peut donc y avoir des pertes d'atomes. L'objectif est alors de trouver une séquence de contrôle qui minimise le temps pour atteindre notre cible de sorte que l'effet de la dissipation soit limité. Dans la suite, nous serons amenés à considérer deux cibles différentes dites, chat de Schrödinger :

$$|\text{chat}_1\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}\left(|\theta=\pi,\varphi\rangle + |\theta=0,\varphi\rangle\right) = \frac{1}{\sqrt{2}}\left(|N/2\rangle + |-N/2\rangle\right), \tag{5.18}$$

et

$$|\text{chat}_2\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}\left(|\theta=\pi/2,\varphi=\pi/2\rangle + |\theta=\pi/2,\varphi=3\pi/2\rangle\right). \tag{5.19}$$

Le premier état correspond à une superposition d'états sur lesquels tous les atomes sont localisés dans un des deux puits, c'est-à-dire que la cible est une superposition macroscopique telle que tous les atomes sont à la fois dans le puits de droite et dans le puits de gauche. C'est la raison pour laquelle cet état est nommé "chat" car comme dans l'expérience de pensée du chat de Schrödinger, tant qu'aucune mesure n'a été effectuée, le chat est à la fois mort et vivant. Le second état correspond à la superposition d'états où la population est répartie de façon équivalente entre les deux puits avec une différence de phase de π.

La dynamique quantique du système est décrite par l'Hamiltonien (5.5) et la dynamique semi-classique est décrite par (5.9). Dans un premier temps, le modèle semi-classique est utilisé pour

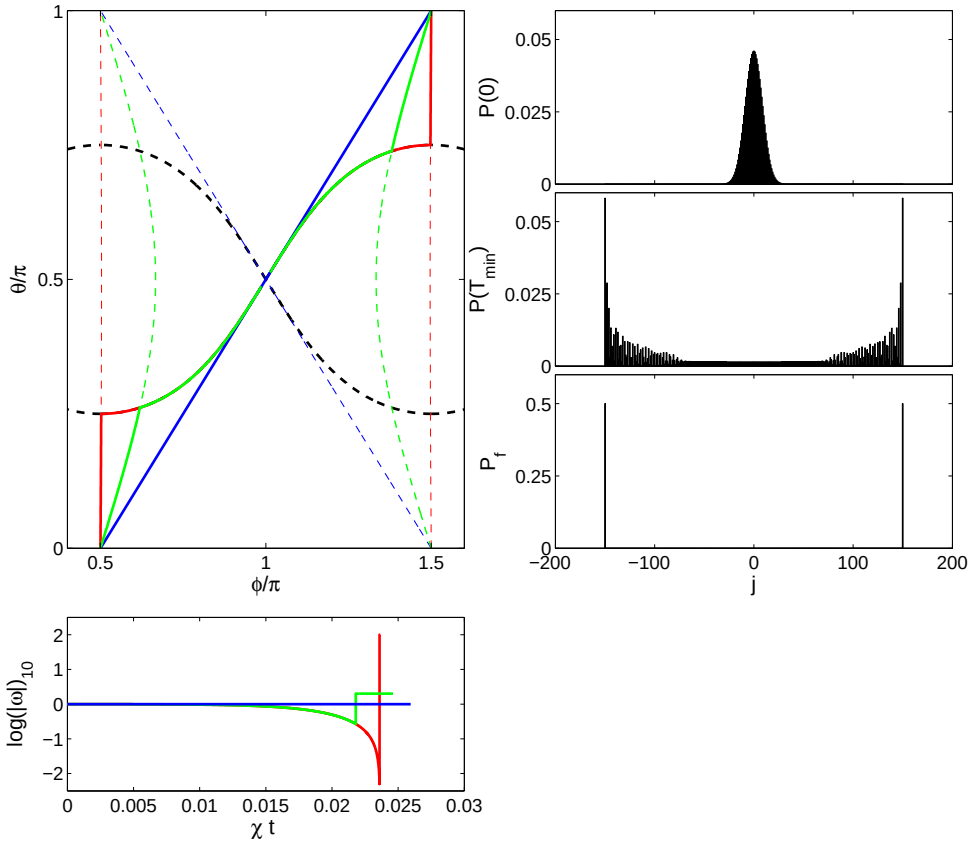


Fig. 5.4: (En haut à gauche) Trajectoire semi-classique, en trait plein bleu $m = 1$, en vert $m = 2$ et en rouge $m = 100$, en trait discontinu noir la ligne singulière et les autres courbes en pointillé correspondent aux trajectoires passant par les pôles pour les différentes bornes. (En haut à droite) Distribution dans la base de Fock de l'état initial. En dessous, on a représenté la distribution obtenue à la fin de la séquence de contrôle classique appliquée à la dynamique quantique et en bas, la distribution correspondant à l'état cible $|\psi_c\rangle = |\text{chat}_1\rangle$. (En bas à gauche) Logarithme décimal des champs de contrôle associés aux trajectoires du dessus.

construire une solution simple. L'état initial est $|\theta = \pi/2, \varphi = \pi\rangle$ qui est délocalisé autour de ce point. La moitié de la distribution se trouve sur l'hémisphère nord et l'autre moitié sur l'hémisphère sud de la sphère de Bloch. L'étude se restreint alors à l'hémisphère nord par symétrie. Il est important de remarquer que l'utilisation de la symétrie est uniquement possible en considérant que $\delta = 0$, δ étant lié à l'asymétrie du puits et à la dégénérescence des niveaux. Si $\delta \neq 0$, il faudrait considérer un problème avec une dimension plus grande ou directement faire un traitement numérique, la levée de dégénérescence brisant alors la symétrie autour du point fixe $(\theta = \pi/2, \varphi = \pi)$.

Pour se ramener à un problème de dimensions deux et pouvoir appliquer les outils du contrôle géométrique, nous allons considérer seulement un point de la distribution sur la boule de Bloch et supposer que la dynamique des autres points sera similaire. Nous verrons dans la suite dans quelle mesure cette approximation est vérifiée. Le but du contrôle est donc d'amener ce point sur une des cibles définies par les états chats. Plus le nombre de particules N sera grand, plus l'approximation sera justifiée car la distribution se localise de plus en plus lorsque N augmente. Pour utiliser le PMP, il faut commencer par définir les champs de vecteurs $\overrightarrow{F} = \dfrac{\chi N}{2}(0, 2\cos\theta)$ et $\overrightarrow{G} = \dfrac{\chi N}{2}(\sin\varphi, \cot\theta\cos\varphi)$, la dynamique semi-classique s'écrit alors :

$$\begin{pmatrix} \dot{\theta} \\ \dot{\varphi} \end{pmatrix} = \overrightarrow{F} + \omega\overrightarrow{G}. \tag{5.20}$$

L'Hamiltonien de Pontryagin est donné par $H = \overrightarrow{p}.\left(\overrightarrow{F} + \omega\overrightarrow{G}\right)$. Le champ de contrôle maximisant cet Hamiltonien, en considérant une borne m sur son amplitude, s'écrit alors $\omega = m\,\mathrm{sign}\,\Phi$ avec $\Phi = \overrightarrow{p}.\overrightarrow{G}$. Comme dans la section (3.3), la fonction Φ est la fonction de commutation et le signe du champ commute si celle-ci s'annule en un point. On doit également définir le lieu singulier, *i.e.* le lieu où la fonction de commutation, ainsi que sa dérivée, s'annulent sur un intervalle de temps. Rappelons que le champ singulier s'obtient en calculant la dérivée seconde de Φ. On trouve alors :

$$\omega_s = \sin\theta\cos\varphi, \tag{5.21}$$

avec ω_s le champ singulier. Le lieu singulier est déterminé par l'équation suivante :

$$\det\left(\overrightarrow{G}, \left[\overrightarrow{F}, \overrightarrow{G}\right]\right) = 2\sin^2\varphi\sin^2\theta - 2\cos^2\theta = 0. \tag{5.22}$$

Avant de décrire la solution optimale, commençons par décrire une solution déjà existante dans la littérature, la solution de Micheli [15]. Cette solution consiste à utiliser un champ de contrôle constant

$\omega = 1$. Sur la figure (5.3) en haut à droite, on observe en vert une ligne séparatrice passant par le point initial $(\theta = \pi/2, \varphi = \pi)$. D'un point de vue quantique le paquet d'onde étant délocalisé autour de ce point, sous l'effet d'un champ constant le paquet d'onde va se séparer en deux et suivre la séparatrice jusqu'aux pôles. La distribution sur la sphère de Bloch est alors délocalisée le long de la séparatrice avec une densité plus forte à chaque pôle comme sur la figure (5.10) du milieu. Dans son article, Micheli a montré que la durée du contrôle était :

$$T_c \approx \frac{1}{\chi} \frac{\ln(8N)}{N}. \tag{5.23}$$

Ce protocole de contrôle va servir de base de comparaison dans la suite. Cependant, il faut remarquer que la solution temps minimum pour la borne $m = 1$ est bien la solution de Micheli. En effet, si l'on regarde la figure (5.3) en haut à droite, la seule trajectoire permettant d'accéder au pôle nord est la séparatrice. De plus, le champ singulier appartient à l'intervalle $[-1, 1]$ et il décroit lorsque φ augmente en partant du point sur la singulière la plus proche autour du point initial. La trajectoire singulière est située sous la séparatrice et ne l'intersecte pas. Il n'y a alors pas d'autre possibilité que d'utiliser la séparatrice pour atteindre les pôles. Passons ensuite à l'analyse du problème lorsque la borne est supérieure à 1, c'est-à-dire que l'on se trouve dans le cas de la figure (5.3) en bas à droite et en bas à gauche. Sur celle-ci, les seules trajectoires permettant d'atteindre les pôles sont les trajectoires vertes passant par ceux-ci. L'objectif à présent est de se déplacer du point initial vers un point de cette trajectoire en minimisant le temps total du contrôle. On observe la forme du lieu singulier en pointillé sur la figure (5.4), on constate que le lieu singulier intersecte la trajectoire séparatrice et qu'il n'est pas possible de rallier les trajectoires passant par les pôles à l'aide de bang. Il est alors naturel d'utiliser le champ singulier. De plus, sachant que d'un point de vue quantique le paquet d'ondes est délocalisé autour du point fixe $(\theta = \pi/2, \varphi = \pi)$, nous choisissons comme point de départ un point appartenant à un cercle de rayon σ autour de ce dernier. Il est possible de calculer analytiquement le temps de contrôle. Pour calculer ce temps minimum, il faut utiliser l'équation de la singulière, de la dynamique et la forme du champ singulier. On a alors les trois équations suivantes :

$$\begin{cases} 0 &= \sin^2\varphi \sin^2\theta - \cos^2\theta \\ \dot{\varphi} &= \dfrac{\chi N}{2}\left(2\cos\theta - \omega \cot\theta \cos\varphi\right) \\ \omega_s &= \sin\theta\cos\varphi \end{cases}. \tag{5.24}$$

En remplaçant la forme de la singulière et du champ singulier dans la dynamique, on trouve :

$$T_{sing} = \frac{2}{\chi N} \int_{\varphi(0)}^{\varphi_1} \frac{\mathrm{d}x}{\sqrt{\sin^2 x(1+\sin^2 x)}}, \tag{5.25}$$

avec φ_1 la valeur de la coordonnée φ associée au point d'intersection entre la ligne singulière et la séparatrice. Le temps, noté T_{sing}, correspond au temps passé sur la singulière pour rejoindre la séparatrice. Pour le bang on peut effectuer un calcul similaire, il suffit d'utiliser la dynamique $\dot{\theta}$ et l'équation de la séparatrice :

$$\begin{cases} \dot{\theta} &= \dfrac{\chi N}{2}\left(2\cos\theta - \omega\cot\theta\cos\varphi\right) \\ 0 &= \sin^2\theta - \omega\sin\theta\cos\varphi \end{cases}. \tag{5.26}$$

En combinant ces équations, on peut identifier l'intégrale décrivant le temps T_{sep} passé sur la séparatrice

$$T_{sep} = \frac{2}{\chi N} \int_{\theta_1}^{\pi} \frac{\mathrm{d}x}{\sqrt{\omega^2 - \omega\sin^2 x}}. \tag{5.27}$$

Le point d'intersection entre la singulière, que l'on note (θ_1, φ_1), peut être calculé à partir des deux équations définissant les deux courbes :

$$\begin{cases} \sin^2\theta - \omega\sin\theta\cos\varphi = 0 \\ \sin^2\varphi\sin^2\theta - \cos^2\theta = 0 \end{cases}. \tag{5.28}$$

A partir de ce système d'équations, on identifie le point d'intersection. Il a pour coordonnées :

$$\begin{cases} \theta_1 &= \arcsin\sqrt{\omega^2 - \omega\sqrt{\omega^2-1}} \\ \varphi_1 &= \arccos\left(\dfrac{\sin\theta}{\omega}\right) \end{cases}. \tag{5.29}$$

Plusieurs choix s'offrent à nous dans la définition de φ_0. Dans son article, Micheli a considéré un nombre d'atomes déjà grand, le rayon de la sphère est alors suffisamment important pour que les distances euclidienne et géodésique se confondent [2]. Localement, la sphère est isomorphe à un plan. De plus, la valeur de φ change suivant que l'on considère un point de départ sur la singulière ou sur la séparatrice $\omega = 1$. Les différents points de départ sont résumés dans le tableau (5.1).

Pour déterminer la position du point initial, il faut considérer la largeur σ du paquet d'ondes semi-classique et utiliser l'équation décrivant soit le lieu singulier, soit la séparatrice. Il y a deux

2. la distance géodésique correspond à la longueur de l'arc de cercle séparant deux points tandis que la distance euclidienne correspond à la longueur de la ligne droite les séparant

	distance euclidienne	distance géodésique
singulière	$\begin{cases} \varphi &= \arcsin\left(\pm\sqrt{\dfrac{1-a^2}{1+a^2}}\right) \\ \theta &= \arccos\left(\pm\sqrt{\dfrac{\sin^2\varphi}{1+\sin^2\varphi}}\right) \end{cases}$	$\begin{cases} \varphi &= \arcsin\left(\pm\sqrt{\dfrac{\sin^2 R}{2\sin^2\theta}}\right) \\ \theta &= \arccos\left(\pm\sqrt{\dfrac{1}{2}\sin^2 R}\right) \end{cases}$
séparatrice à $\omega = 1$	$\begin{cases} \varphi &= \arccos\left(\pm\dfrac{R}{\sqrt{2}}\right) \\ \theta &= \arcsin\left(\pm\dfrac{2-R^2}{2\sin\theta}\right) \end{cases}$	$\begin{cases} \varphi &= \arccos\left(\pm(1-\sin^2 R)^{1/4}\right) \\ \theta &= \arcsin\left(\pm\sqrt{\dfrac{1-\sin^2 R}{\cos^2\varphi}}\right) \end{cases}$

Tab. 5.1: Les différentes conditions initiales utilisées. On note $a = \dfrac{2-R^2}{2}$ et $R^2 = \dfrac{1}{N}$.

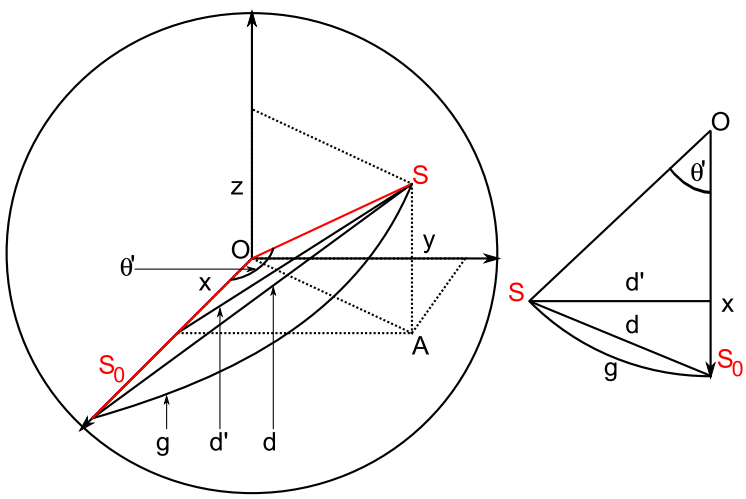


Fig. 5.5: Schéma définissant les distances euclidienne et géodésique.

possibilités : utiliser le lieu distant de σ avec une distance géodésique sur la sphère ou une distance euclidienne comme sur la figure (5.5).

Sur la figure (5.5) ces deux possibilités consistent soit à choisir $d = R$ ou $g = R$. Les deux distances suivantes sont alors définies par :

$$(\overrightarrow{S} - \overrightarrow{S}(0))^2 = R^2 = 2(1 - \cos\varphi\sin\theta) \quad \text{(distance euclidienne)} \tag{5.30}$$

$$\sin^2 R = \sin^2\theta\sin^2\varphi + \cos^2\theta \quad \text{(distance géodésique)}. \tag{5.31}$$

Il est finalement possible de trouver quatre conditions initiales différentes comme dans le tableau (5.1).

En utilisant un des deux jeux de coordonnées du tableau (5.1), on peut calculer le temps total de

la solution géométrique Bang-Singulière, noté T_{min}, et on a[3] :

$$T_{min} = \frac{2}{\chi N}\int_{\varphi(0)}^{\varphi_1} \frac{\mathrm{d}x}{\sqrt{\sin^2 x(1+\sin^2 x)}} + \frac{2}{\chi N}\int_{\theta_1}^{\pi} \frac{\mathrm{d}x}{\sqrt{\omega^2 - \omega \sin^2 x}}. \tag{5.32}$$

La valeur du temps de contrôle dépend du point initial considéré. On peut évaluer numériquement cette formule, par exemple en choisissant comme point de départ la distance géodésique, on obtient le résultat de la figure (5.6). Cette figure représente l'évolution du temps minimum en fonction de l'amplitude maximum de ω et du nombre d'atomes N. On constate que le temps de contrôle diminue quand N augmente et qu'il est dépendant de ω surtout pour de faibles amplitudes. Pour pouvoir

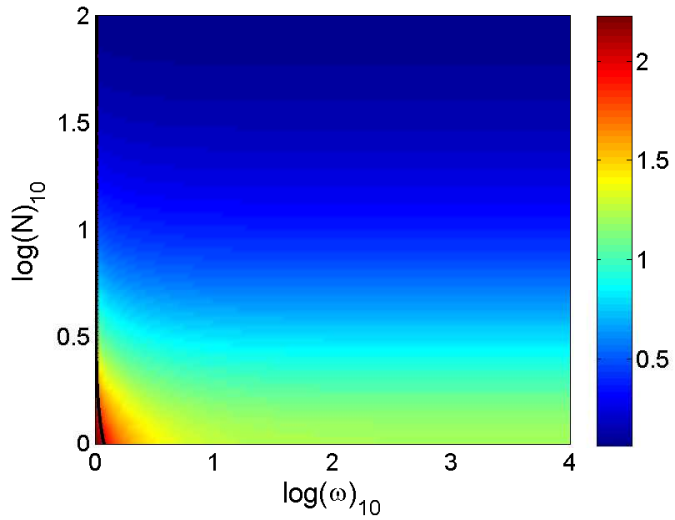


Fig. 5.6: Évolution du temps minimum pour générer le premier état chat en fonction de ω et N.

comparer le temps minimum de la solution optimale avec le temps minimum de Micheli, les temps de la solution de Micheli avec les distances euclidienne et géométrique sont considérées. Il faut utiliser l'évolution dynamique de φ, utiliser $\omega = 1$ et la forme de la séparatrice $\cos\varphi = \sin\theta$. Le temps suivant est alors déterminé :

$$\int_{\varphi(0)}^{3\pi/2} \frac{2\mathrm{d}x}{\chi N \sin x} = t. \tag{5.33}$$

La primitive de l'expression sous l'intégrale est :

$$\frac{2}{\chi N}\ln\left(\frac{1-\cos x}{\sin x}\right). \tag{5.34}$$

3. Si la borne est infinie, le déplacement le long de la séparatrice est instantanée et le temps minimum dépend alors seulement du temps mis pour parcourir le lieu singulier de φ_0 à $\varphi = 3\pi/2$.

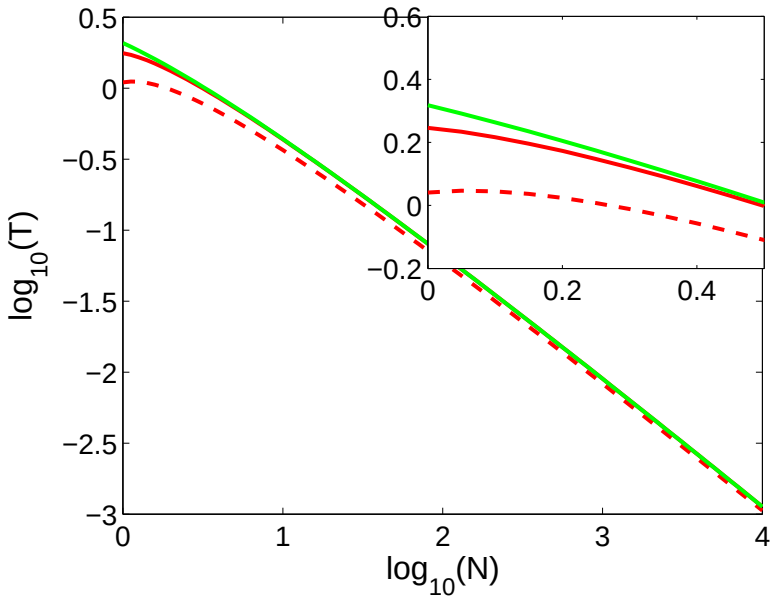


Fig. 5.7: Évolution de la durée du contrôle en fonction du nombre d'atomes N. Les lignes rouge et verte représentent les durées exacte et approximée de la solution de Micheli ($\omega = 1$). La ligne rouge en pointillé représente, quant-à elle, la solution optimale pour la borne $m = 1 \times 10^6$. La petite fenêtre est un agrandissement autour de l'origine.

Pour la distance euclidienne et géométrique, on trouve alors :

$$\begin{cases} t_{euc} & = -\dfrac{2}{\chi N} \ln\left(\sqrt{2N} - \sqrt{2N-1}\right) \\ t_{geo} & = -\dfrac{2}{\chi N} \ln\left(\dfrac{1-\sqrt{\cos\sigma}}{\sqrt{1-\cos\sigma}}\right) \end{cases} , \tag{5.35}$$

avec $\sigma = 1/\sqrt{N}$, *euc* correspondant au cas euclidien et *geo* au cas géodésique. En effectuant le développement limité de ces expressions lorsque $N \to \infty$, dans les deux cas, la formule de Micheli $T_c \approx \dfrac{1}{\chi}\dfrac{\ln(8N)}{N}$ est retrouvée. Sur la figure (5.7), la comparaison numérique du temps de la solution de Micheli pour les deux distances et de la solution optimale pour $\omega = 1 \times 10^6$ est présentée. On constate que le temps de toutes les solutions évolue en $1/N$ quand ω devient grand et que, pour une borne grande, un gain de temps est effectivement constaté.

Remarquons que l'étude du cas $\omega < 1$ n'a pas été conduite. Le temps de contrôle deviendrait plus grand, ce qui n'est pas recherché expérimentalement. Malgré tout, nous pouvons faire quelques constats. La solution serait une solution bang constituée de plusieurs commutations. Numériquement, on peut conjecturer que le nombre de commutations est obtenu approximativement en arrondissant $1/\omega$ à la valeur entière la plus proche. L'utilisation de commutations se comprend qualitativement. Une commutation revient à transformer φ en $\varphi + \pi$. En analysant la figure (5.3), on voit qu'en utilisant un premier bang, il suffit de laisser évoluer le système jusqu'à un maximum de θ puis de changer le

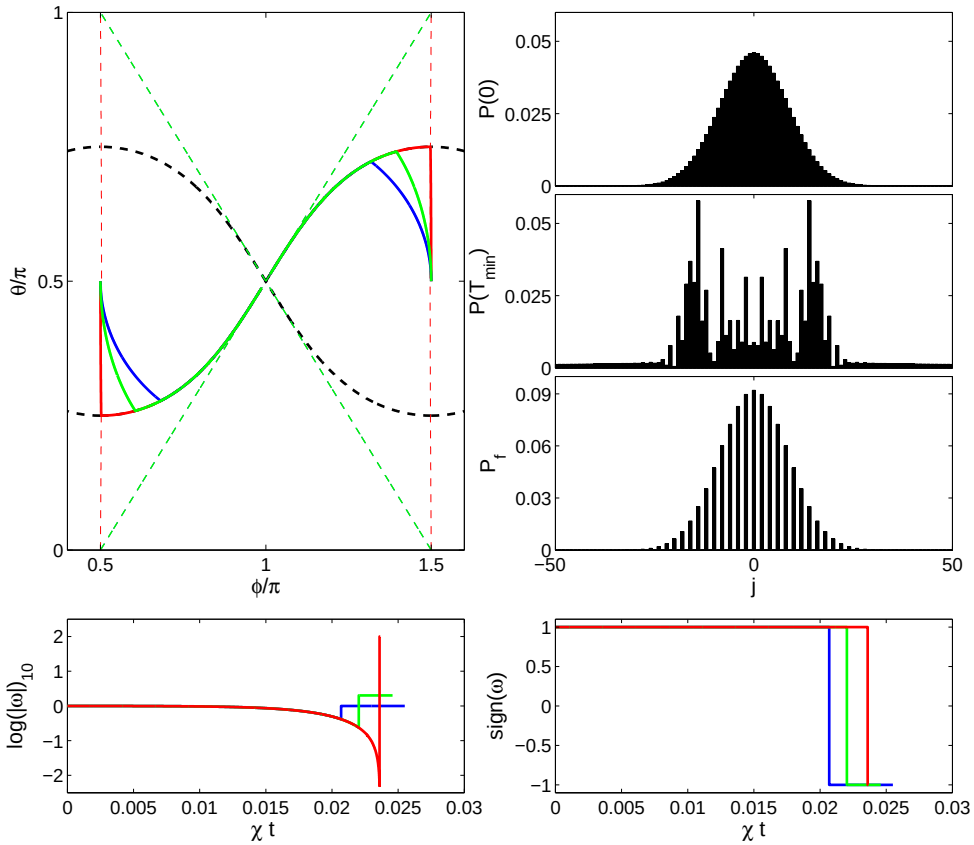


Fig. 5.8: Mêmes résultats que pour la figure (5.4) mais pour $|\psi_c\rangle = |\mathrm{chat}_2\rangle$.

signe du contrôle pour se retrouver sur une nouvelle trajectoire telle que θ augmente à nouveau. Ceci n'est qu'une explication qualitative. Pour trouver la solution temps minimum, il faudrait faire une étude complète, voire éventuellement construire la synthèse optimale, afin de s'assurer que la solution trouvée est temps optimal.

Un raisonnement similaire au précèdent permet de trouver la solution temps minimum reliant l'état $|\text{chat}_2\rangle$ qui a pour coordonnées $(\theta = \pi/2, \varphi = 3\pi/2)$ et $(\theta = \pi/2, \varphi = \pi/2)$. Une nouvelle fois, par symétrie, seulement la moitié du paquet d'onde est considérée. Parmi cette distribution, seulement un point sera utilisé pour construire la séquence optimale. Comme dans le cas précédent, l'utilisation de la singulière permet de rejoindre une trajectoire bang qui permet d'atteindre la cible. Cette fois, le signe du bang est négatif, la séquence de contrôle est de type singulière bang. La forme du champ de contrôle obtenue est visible sur la figure (5.8) ainsi que les trajectoires associées. On remarque une nouvelle fois que lorsque la borne tend vers l'infini, il faut utiliser la singulière jusqu'à la séparatrice. Le parcours le long cette dernière a une durée nulle lorsque la borne est infinie. La limite du temps minimum prend alors la forme de l'équation (5.25).

5.3.2 Contrôle optimal par algorithme numérique

Jusqu'ici nous avons décrit comment obtenir la solution semi-classique et donner la limite du temps minimum quand la borne du contrôle tend vers l'infini. Cependant, fondamentalement, le système reste quantique et il est donc nécessaire de vérifier l'action du champ semi-classique sur le système. Dans le cas quantique, en choisissant $\chi = 1$ et $N = 300$, la projection sur l'état $|\text{chat}_1\rangle$ après le temps T_c, définit par l'équation (5.23), est de 0.1394, et l'information de Fisher F_Q (voir section (5.2)) obtenue est d'environ $\dfrac{N^2}{2}$. La projection est plutôt faible, même si l'information de Fisher est de l'ordre de grandeur de N^2. Cela signifie que même si l'état est éloigné de la cible, une superposition d'états est quand même produite à l'aide de notre séquence de contrôle. Les résultats sont assez similaires pour les autres valeurs de la borne et pour l'état $|\text{chat}_2\rangle$. L'ensemble des résultats est synthétisé dans le tableau (5.2).

	$\|\text{chat}_1\rangle$			$\|\text{chat}_2\rangle$		
m	1	2	100	1	2	100
$\chi t(\times 10^{-3})$	25.9	24.6	23.6	25.5	24.6	23.6
P	0.139	0.122	0.116	0.091	0.100	0.116
F_Q/N^2	0.636	0.596	0.587	0.514	0.547	0.586

Tab. 5.2: Résultats numériques obtenus en appliquant la solution semi-classique sur le système quantique pour les bornes $m = 1$, 2 et 100. La durée du contrôle (χt), la projection (P) et l'information de Fisher (F_Q/N^2) sont données pour les états $|\text{chat}_1\rangle$ et $|\text{chat}_2\rangle$.

Les séquences de contrôle semi-classiques sont certes simples mais la projection sur la cible reste assez faible. Il faut donc envisager une approche numérique pour trouver une séquence de contrôle à même de conduire efficacement le système sur la cible. La taille du système choisie $N = 300$ nous interdisant d'envisager une approche par fonction de tir, un algorithme monotone est alors utilisé. Les formules utilisées sont celles de la section (2.5.1) :

$$\begin{cases} u_{k+1} &= \dfrac{1-\lambda\eta_1}{1+\lambda\eta_1}\tilde{u}_k - \dfrac{\eta_1}{1+\lambda\eta_1}A_{k,k+1} \\ \tilde{u}_k &= \dfrac{1-\lambda\eta_2}{1+\lambda\eta_2}u_k - \dfrac{\eta_2}{1+\lambda\eta_2}A_{k,k} \end{cases}, \tag{5.36}$$

avec $A_{k,k'} = -2\,\mathrm{Im}(\langle\psi_k(t)|\chi_{k'}(t)\rangle\,\langle\chi_{k'}(t)|\,H_1\,|\psi_k(t)\rangle)$, en notant $H = H_0 + \omega H_1$ avec $H_0 = \chi J_z^2$ et $H_1 = \dfrac{\chi N}{2}J_x$. On a choisi la forme du potentiel telle que la paramètre δ soit nul. Dans ce cas la taille de l'algèbre de Lie engendré par les opérateurs J_z^2 et J_x n'est pas de rang plein et le système n'est pas controlable. Numériquement cela se traduit par une réelle difficulté à trouver une solution. Il y a alors deux solutions la première est de prendre un paramètre δ non nul et la seconde, celle que l'on présente, consiste à initialiser l'algorithme par une solution relativement efficace dés le départ. L'idée est alors d'utiliser la solution géométrique semi-classique pour initialiser l'algorithme monotone. Les paramètres du système sont les mêmes que pour la partie semi-classique, $\chi = 1$ et $N = 300$. Le paramètre n est introduit et est défini comme étant le rapport entre la durée du contrôle et le temps minimum T_c. Le calcul du contrôle est effectué pour $n = 1$, 5 et 10. Pour $n > 1$, on utilise le champ de contrôle semi-classique "dilaté" [4] d'un facteur n pour initialiser l'algorithme. On obtient alors les résultats du tableau (5.3). Les paramètres de l'algorithme utilisés sont $(\lambda = 10^{-6}, \eta_1 = \eta_2 = 10^3)$ pour $n = 1$ et $(\lambda = 5 \times 10^{-4}, \eta_1 = \eta_2 = 2)$. Sur la figure (5.9), la forme du champ de contrôle, l'évolution de la projection et de l'information de Fisher sont présentées. Pour le temps minimum, c'est-à-dire $n = 1$, une projection de seulement 0.255 est obtenue, cela correspond tout de même à une amélioration par rapport à la solution semi-classique. Le champ de contrôle devient très grand vers la fin pour se rapprocher de la cible. Pour atteindre la cible avec une meilleure précision, il est nécessaire d'augmenter le temps de contrôle jusqu'à $n = 10$. Pour $n = 10$, la projection finale sur l'état cible est de 0.994. Il est intéressant de noter que la forme du champ reste assez proche d'un bang avec quelques modulations. Cette remarque est encore plus frappante pour le contrôle numérique permettant d'atteindre l'état $|\mathrm{chat}_2\rangle$. En effet, le champ de contrôle obtenu présente des modulations par rapport à la solution semi-classique mais ces modulations apparaissent autour de la commutation calculée dans le cas semi-classique. Il est également important de noter que si l'on regarde l'évolution

4. Ici dilaté signifie que le rapport entre la durée du contrôle et la durée du contrôle singulier est conservé, même si la durée totale est augmentée d'un facteur donné.

	$\|\text{chat}_1\rangle$			$\|\text{chat}_2\rangle$		
n	1	5	10	1	5	10
P	0.255	0.880	0.994	0.245	0.903	0.989
F_Q/N^2	0.650	0.951	0.997	0.632	0.946	0.996

Tab. 5.3: Mêmes résultats que dans le tableau (5.2) mais pour le contrôle quantique. Le paramètre n représente le rapport entre la durée du contrôle et le temps minimum T_c.

de la distribution $P(\theta, \varphi)$ au cours du temps, la distribution suit dans un premier temps la trajectoire semi-classique $m = 1$ puis au moment de la commutation, suit la trajectoire semi-classique $m = -1$. La solution géométrique nous a donc permis d'obtenir la structure globale et grossière de la vraie solution quantique. Les détails de cette dernière ont été construis à l'aide d'un algorithme monotone à partir de cette première solution.

5.4 Discussion

Dans la section précédente, nous avons pu construire une solution géométrique basée sur le modèle semi-classique. Cela a permis d'accéder à la durée caractéristique du contrôle. Ensuite, un algorithme monotone a été utilisé pour construire une solution permettant d'atteindre l'état cible plus fidèlement. Les temps caractéristiques dans une expérience sur les gaz d'atomes froids sont de l'ordre de la milliseconde, et la possibilité de mise en forme du champ est assez large. Comparé au temps caractéristique de la dynamique, le contrôle peut commuter rapidement, cela signifie que les contrôles obtenus sont expérimentalement réalistes. Couramment, le paramètre Ω est compris dans l'intervalle $[0, 2\pi \times 2\text{KHz}]$ et $\chi \approx 2\pi \times 0.13\text{Hz}$. A ce stade, en prenant $N = 300$, on trouve pour $\omega = 100$, $\Omega = 2\pi \times 1.95\text{KHz}$ (voir l'équation (5.9)). Maintenant, il faut se poser la question de l'influence de la dissipation. Dans ce type d'expérience, il existe plusieurs sources de décohérence et de dissipation qui ont un effet extrêmement néfaste sur le système. La principale source de décohérence est due à la perte d'atomes du piège [96] et au bruit de phase [97]. Ce dernier a pour origine des fluctuations dans les énergies des deux modes de la jonction Josephson Bosonique. Une perspective intéressante de cette étude serait la prise en compte de ces effets de dissipation dans le modèle afin de trouver une séquence de contrôle plus proche des expériences pour pouvoir envisager une implémentation réelle. Il faut dissocier la dissipation due à la décohérence notée τ_{dec} de celle due à la dissipation τ_{diss}, qui provient de la relaxation des composantes de la superposition. Ces deux temps sont généralement bien distincts. La décohérence peut être décomposée en trois parties. La première correspond aux pertes à un corps liées à la dispersion due aux impuretés. Ces pertes ont un temps caractéristique $\tau_{\text{dec}}^{-1} \propto N$. Ensuite, il y a les pertes à deux corps avec un temps caractéristique $\tau_{\text{dec}}^{-1} \propto N^2$ due à la collision atome-atome. Le dernier effet

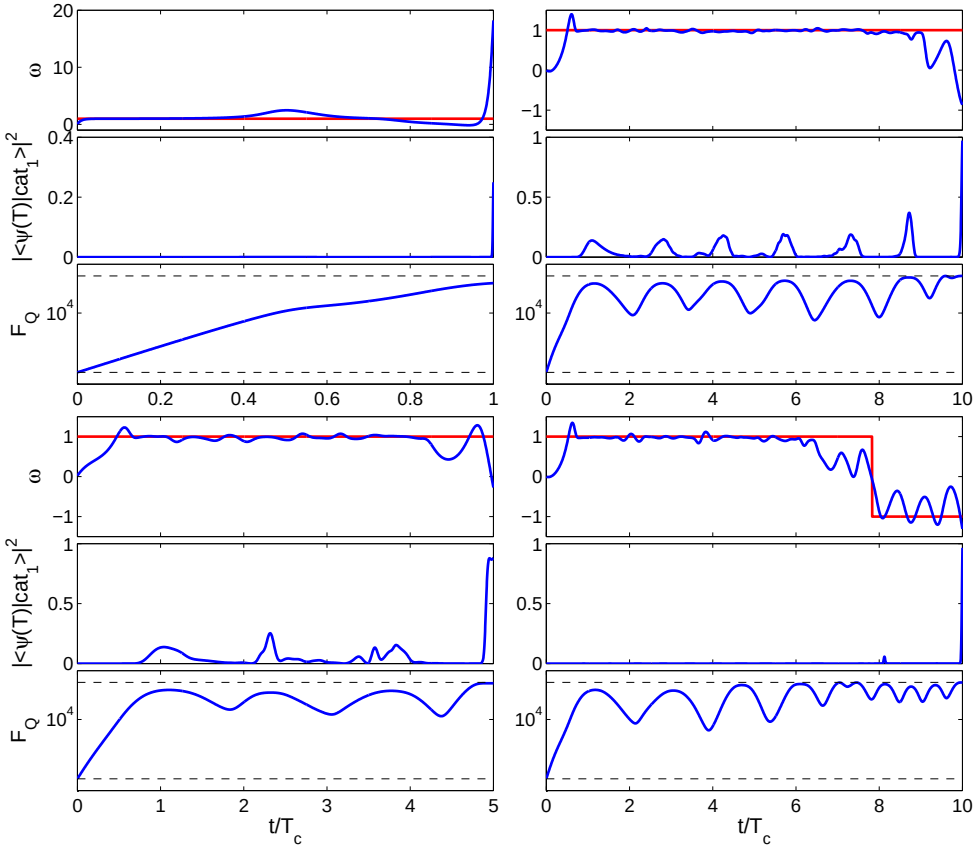


Fig. 5.9: (En haut) Évolution du champ de contrôle ω obtenu à l'aide d'un algorithme monotone initialisé par la solution géométrique. La figure du dessous représente l'évolution de la projection sur l'état cible pendant la séquence de contrôle. (En dessous) Évolution de l'information de Fisher en fonction du temps. Pour les trois autres figures, de gauche à droite et de haut en bas, les temps de contrôles sont $t = t_{min}$, $5t_{min}$, $10t_{min}$ et à nouveau $10t_{min}$. La cible utilisée est $|\psi_c\rangle = |\text{chat}_1\rangle$ pour les trois premiers cas, c'est-à-dire une superposition d'états telle que tous les atomes soient à la fois dans le puits de droite et dans le puits de gauche. Pour le dernier cas, l'état cible est $|\psi_c\rangle = |\text{chat}_2\rangle$.

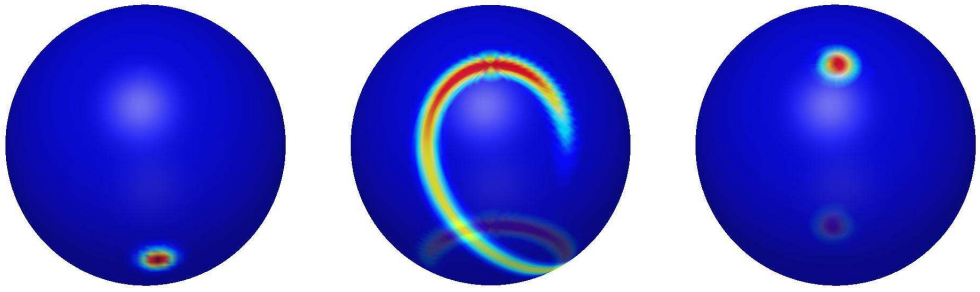


Fig. 5.10: (De gauche à droite) Distribution $P(\theta, \varphi)$ de l'état initial, de l'état obtenu après utilisation de la séquence de contrôle géométrique et de l'état obtenu après utilisation de la séquence de contrôle quantique.

est la dissipation à trois corps [98] avec un temps caractéristique $\tau_{\text{dec}}^{-1} \propto N^3$. Le temps caractéristique de formation de notre état est de l'ordre de $1/N$ tandis que la dissipation est en $1/N^2$ et $1/N^3$, cela signifie qu'en pratique le nombre d'atomes dans la cavité doit être limité afin d'éviter une dissipation trop forte. Typiquement la dissipation τ_{diss} est de l'ordre de 0.1s pour $\chi = 2\pi \times 0.13$Hz, alors que pour $N = 300$, on trouve $T_{min} = 0.0289s < 0.1$s. Néanmoins, la décohérence reste très rapide : $\tau_{\text{dec}} \propto \tau_{\text{diss}}/300 \propto 0.33$ms ce qui est donc cent fois inférieur au temps de contrôle. Pour pouvoir utiliser notre protocole, il est nécessaire de diminuer l'influence de la dissipation d'un facteur 100 ou bien de trouver un nouveau protocole tenant compte de la dissipation [99] afin de limiter son influence durant la génération de la superposition macroscopique.

Chapitre 6

Comparaison du contrôle optimal géométrique avec d'autres méthodes de contrôle

6.1 Comparaison des méthodes de contrôle optimal géométrique et numérique

Cette section s'intéresse à la comparaison des méthodes de contrôle optimal géométrique et numérique. Il est nécessaire de bien faire la distinction entre ce que l'on va appeler par la suite géométrique et numérique. Numérique signifie ici que l'on va utiliser un algorithme numérique itératif qui va converger vers une extrémale du problème tandis que géométrique signifie qu'une analyse géométrique du problème a été faite préalablement afin de déterminer la structure de l'ensemble des extrémales du problème. Dans ce dernier cas, il suffit alors de chercher un moment initial $p(0)$ tel que l'extrémale associée vérifie les contraintes aux bords et la structure dérivée de l'analyse géométrique. Le problème de la saturation sera utilisé comme cas d'étude en temps minimum puis en énergie minimum.

Le système physique considéré pour la comparaison est le système correspondant à un spin 1/2 dissipatif, comme dans le chapitre 2. Le contrôle est supposé résonant avec la fréquence de transition entre les deux niveaux et par symétrie de rotation autour de z, on peut se ramener à un système à deux dimensions. La dynamique s'écrit alors :

$$\begin{cases} \dot{y} &= -\Gamma y + uz \\ \dot{z} &= \gamma(1-z) - uy \end{cases} . \tag{6.1}$$

L'algorithme numérique utilisé pour effectuer la comparaison est l'algorithme GRAPE défini dans la section (2.5.2). Le premier exemple de comparaison sera le cas de la saturation de l'aimantation en temps minimum puis nous étudierons la saturation du spin en énergie minimum [100].

6.1.1 Cas du temps minimum

Le problème de la saturation en temps minimum par les méthodes géométriques a déjà été étudié dans la section (3.3). Le résultat est un contrôle ayant une structure bang singulière bang singulière, notée BSBS. Pour les algorithmes numériques, le traitement du problème consiste à utiliser la fonctionnelle de coût :

$$\Phi_T = 1 - \sqrt{y^2 + z^2}. \tag{6.2}$$

L'algorithme GRAPE cherche à maximiser le coût en un temps fixe t_f. Maximiser ce coût revient à saturer le spin, c'est-à-dire que l'aimantation doit atteindre le point de coordonnées $(y = 0, z = 0)$ qui correspond au centre de la boule de Bloch. Un premier test consiste simplement à utiliser l'algorithme GRAPE en fixant $t_f = t_{min}$. Sur la figure (6.1) du milieu, on peut voir la comparaison de la trajectoire optimale obtenue par la méthode géométrique en trait plein et la trajectoire obtenue par GRAPE en trait discontinu. Sur cette figure, les trajectoires des systèmes avec les paramètres $(T_1 = 740\text{ms}, T_2 = 60\text{ms})$ et $(T_1 = 740\text{ms}, T_2 = 246\text{ms})$ sont tracées respectivement à gauche et à droite de la boule de Bloch. Les trajectoires obtenues par les deux méthodes sont très similaires, on constate que la solution GRAPE est lissée. L'algorithme ne prenant pas en compte spécifiquement le lieu singulier, il ne peut pas exhiber de singulière. Cependant, la trajectoire GRAPE est très proche de la ligne singulière (qui est pour rappel la projection du lieu singulier de l'espace des phases (x, p) sur l'espace physique x). Sur la figure (6.1a), la solution géométrique, qui utilise une méthode de tir arrive à 5.34×10^{-16} du centre de la boule tandis que la solution GRAPE se rapproche à 2.25×10^{-13}. Pour le cas de la figure (6.1b), la solution géométrique se rapproche à 9.88×10^{-15} du centre tandis que GRAPE se rapproche à 6.13×10^{-8} de celui-ci.

Une seconde approche possible est l'utilisation de l'algorithme GRAPE pour balayer un ensemble de temps de contrôle différents, la figure (6.1) du haut est alors obtenue. Sur celle-ci, on observe l'évolution du logarithme décimal de Φ_t en fonction de t. On constate une variation abrupte du coût au voisinage du temps minimum. Le temps minimum obtenu numériquement est de 204.3ms contre 203.7ms pour le temps minimum géométrique. Cette valeur numérique est définie comme l'abscisse de la droite où intervient la variation abrupte de l'évolution de Φ_t (la ligne pointillée).

Il convient d'apporter quelques précisions permettant de mieux comparer les avantages de chacune des méthodes. Le système hamiltonien est résolu à l'aide d'une méthode de type Runge-Kutta d'ordre 4-5. Cela permet ensuite d'obtenir la forme du champ de contrôle. Il faut se rappeler que malgré la possibilité de mise en forme de champ très abrupte, il n'est pas possible de discrétiser le champ de contrôle en dessous d'une certaine limite. En d'autre termes, on doit utiliser un nombre de points

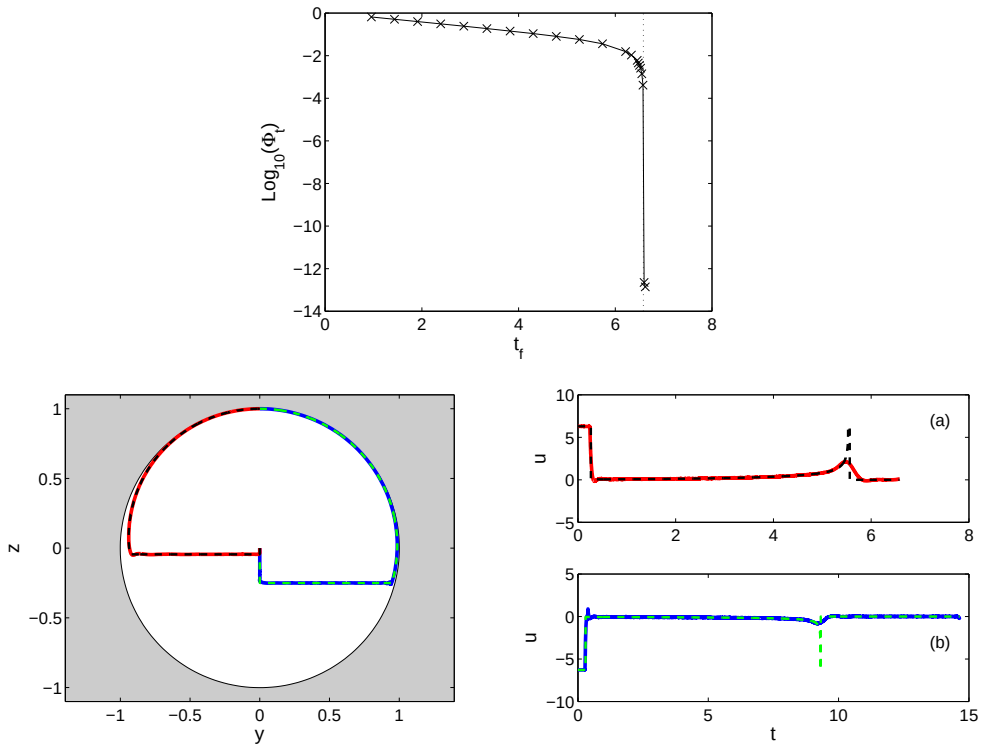


Fig. 6.1: (Haut) Évolution du coût terminal Φ_t en fonction de la durée du contrôle t_f. (En bas à gauche) Trajectoires numérique et géométrique associées aux deux jeux de paramètres (T_1, T_2) choisis. (En Bas à droite) A gauche de la boule de Bloch les trajectoires du système $(T_1 = 740\text{ms}, T_2 = 60\text{ms})$ et à droite de la boule de Bloch les trajectoires du système $(T_1 = 740\text{ms}, T_2 = 246\text{ms})$. La trajectoire en trait plein correspond à la solution géométrique et en pointillé à la solution numérique. (En bas à Droite) Contrôle associé aux trajectoires. La partie supérieure correspond aux trajectoires de gauche et la partie inférieure aux trajectoires de droite.

finis afin de décrire le champ. La propagation de la dynamique à l'aide des équations de Hamilton est réalisée sur une grille de 500000 points. Ensuite, pour reproduire les résultats expérimentaux, on discrétise le champ sur un nombre de points plus petit. En pratique, le champ est discrétisé avec un pas de l'ordre de la μs. Dans notre cas, on discrétise le champ à l'aide de 5000 points. Pour finir, on effectue une propagation en considérant le champ constant sur un pas de temps à l'aide de la solution exacte obtenue en posant $u(t) = u$. Sous forme matricielle, cette solution s'écrit :

$$X(t) = e^{A(u)t}(X(0) + A^{-1}(u)B), \tag{6.3}$$

avec une dynamique gouvernée par une équation de la forme $\dot{X} = A(u)X + B$. Cette discrétisation en un nombre fini de points est problématique d'un point de vue de pratique. La solution géométrique est constituée de quatre arcs, or le pas de temps va être commun aux quatre intervalles. Génériquement, le pas de temps ne sera pas un diviseur commun pour les quatre segments, il s'en suit une perte de précision sur les trois temps de commutation. Pour passer à 5000 points, une moyenne du champ de contrôle est réalisée sur chaque intervalle, la distance par rapport au centre de la boule de Bloch de la solution géométrique passe alors à 1.15×10^{-3} et 5.70×10^{-3} pour chaque cas. Notons qu'il est bien sûr possible de trouver un nombre de points plus adéquat de sorte que la discrétisation ait un effet moins néfaste. Par exemple, en choisissant 5839 points la distance passe à 2.24×10^{-4} pour le premier cas. Pour cet exemple, la méthode purement numérique possède un avantage. L'optimisation étant déjà effectuée sur un nombre de points fixé (pour le tir l'intégration est faite à l'aide d'une méthode d'intégration à pas variable), elle permet de trouver une solution qui expérimentalement sera plus précise et directement adaptée aux nombres de points expérimentaux du spectromètre. Ceci conclut la comparaison entre les méthodes géométrique et numérique dans le cas de la saturation en temps minimum.

6.1.2 Cas de l'énergie minimum

Dans cette section, la comparaison des deux méthodes pour le cas de la saturation en énergie minimum est traitée. Dans [100], il est montré que les singulières ne jouent aucun rôle dans ce problème, on considère alors seulement des extrémales régulières.

Les résultats obtenus pour les deux méthodes sont encore une fois très similaires, les résultats sont synthétisés dans le tableau (6.1). La partie supérieure du tableau compare les deux méthodes pour le jeu de paramètres ($T_1 = 740\text{ms}, T_2 = 60\text{ms}$) mais en faisant varier le temps de contrôle d'un facteur K défini comme $t_f = Kt_{min}$, avec t_f la durée du contrôle fixée et t_{min} le temps définit dans la section

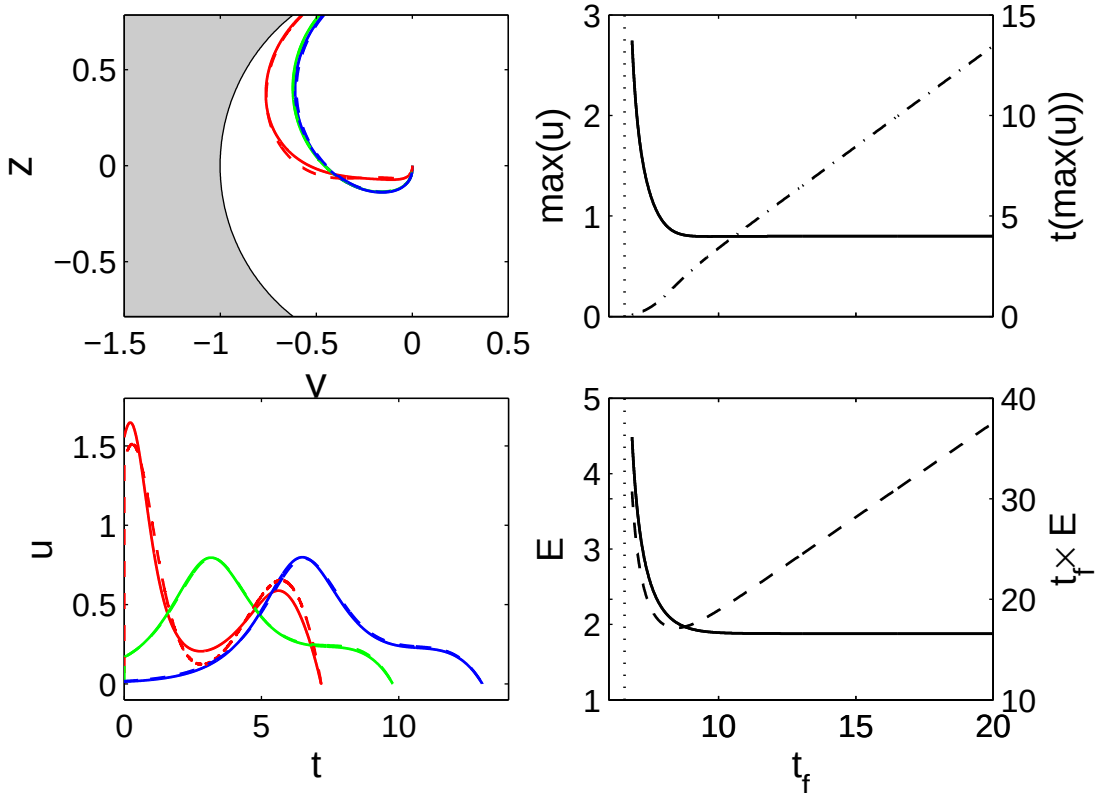


Fig. 6.2: (En haut à gauche) Trajectoire saturante minimisant l'énergie pour une durée $t_f = K \times t_{min}$ pour $K = 1.1$, $K = 1.5$ et $K = 2$ respectivement en rouge, vert et bleu. Les trajectoires numériques sont en trait discontinu et les trajectoires géométriques en trait plein. (En bas à gauche) Champs de contrôle associé aux trajectoires du cadre du dessus. (En haut à droite) Évolution du maximum du champ en fonction de la durée du contrôle en trait plein et évolution de la position du maximum en trait discontinu. (En bas à droite) Évolution de l'énergie du contrôle en fonction de la durée en trait plein et évolution du produit énergie temps de contrôle.

(3.3). Les tests sont effectués pour $K = 1.1$, 1.5 et 2, les trajectoires obtenues sont visibles sur la figure (6.2) en haut à gauche. Les trajectoires des deux méthodes sont très similaires. Pour ce problème, les trajectoires des deux méthodes sont lisses. Cela vient de l'absence de borne sur le champ. La partie basse du tableau (6.1) montre l'influence des paramètres dissipatifs. Les résultats restent une nouvelle fois comparables. La précision de la méthode géométrique est donnée deux fois : à gauche il s'agit de la précision obtenue en résolvant les équations de Hamilton à l'aide d'une méthode de type Runge-Kutta tandis que la valeur de droite correspond à la propagation discrète à l'aide du champ discrétisé sur un nombre de points plus faible. Avant de continuer notre étude sur les comparaisons des différentes méthodes, il convient de détailler un peu le comportement de la solution en énergie minimum. Sur la figure (6.2), on constate que lorsque le temps de contrôle augmente, l'énergie diminue et tend vers une valeur fixe. Cette convergence se comprend par le fait que lorsque le temps de contrôle augmente, la valeur du champ de contrôle à l'instant initial tend vers 0 et la solution tend donc vers un point fixe de la dynamique. Si le champ de contrôle est quasi-nul à l'équilibre, il faut alors un temps infini pour quitter ce point.

Méthode	GRAPE	GM
K	1.1	
Énergie	3.1876	3.1272
Distance	5.37×10^{-12}	$1.85 \times 10^{-12} \vert 1.04 \times 10^{-8}$
K	1.5	
Énergie	1.8967	1.8963
Distance	1.51×10^{-12}	$4.99 \times 10^{-13} \vert 2.90 \times 10^{-8}$
K	2	
Énergie	1.8789	1.8781
Distance	3.24×10^{-12}	$8.18 \times 10^{-13} \vert 5.43 \times 10^{-8}$
$\delta\gamma$	0.4742	
Énergie	1.8780	1.8798
Distance	4.22×10^{-11}	$1.34 \times 10^{-14} \vert 1.36 \times 10^{-6}$
$\delta\gamma$	0.2373	
Énergie	1.3034	1.3031
Distance	1.16×10^{-11}	$6.05 \times 10^{-14} \vert 4.11 \times 10^{-7}$
$\delta\gamma$	0	
Énergie	0.5879	0.5881
Distance	4.75×10^{-11}	$3.68 \times 10^{-14} \vert 1.21 \times 10^{-7}$

Tab. 6.1: (Haut) Comparaison des méthodes géométrique (colonne GM) et numérique (colonne GRAPE) pour différentes durées de contrôle $K = t_f/t_{min} = 1.1$, 1.5 et 2. (Bas) Comparaison des deux méthodes pour différentes valeurs de $\delta\gamma$ avec $K = 10$ fixé. Le paramètre $\delta\gamma$ est défini par $\delta\gamma = 2\pi/\omega_{max}(T_1 - T_2)/T_1T_2$. La longueur $D = \sqrt{y^2 + z^2}$ est la distance par rapport au centre de la boule de Bloch.

A l'inverse lorsque le temps de contrôle diminue et tend vers la valeur du temps minimum alors

l'énergie du contrôle explose et tend vers l'infini. Ce comportement se comprend dans le cas du traitement du temps minimum avec une borne infinie sur le contrôle [101]. Lorsque l'on fait évoluer la valeur de la borne vers l'infini, l'énergie des bangs peut être négligée car le produit durée fois bornes, $t \times m$, pour se déplacer vers la singulière est constant [1]. Il faut donc s'intéresser à la singulière horizontale. L'énergie de la singulière verticale est nulle car le contrôle singulier associé est également nul. L'énergie nécessaire pour se déplacer le long de la singulière horizontale peut être exprimée comme suit :

$$E = \int_{t_0}^{t_1} \mathrm{d}t u_s(t)^2 = \int_{-\sqrt{1-z_0^2}}^{0} \frac{\mathrm{d}y}{\dot{y}} u_s(y)^2, \tag{6.4}$$

avec

$$u_s = \frac{T_2 - 2T_1}{2T_1(T_1 - T_2)} \frac{1}{y}, \tag{6.5}$$

le contrôle singulier le long de la singulière horizontale. t_0 et t_1 sont respectivement les temps initial et final le long de cette trajectoire. En l'absence de borne, le point d'admissibilité tend vers $y = 0$. Or autour de cette valeur, $\dot{y} = -\Gamma y - u_s^2 z_0$ est de l'ordre de $-u_s z_0$ car u_s évolue comme $1/y$. L'intégrant de l'énergie évolue alors lui aussi en $1/y$ et l'énergie a donc une divergence logarithmique quand $y \to 0$. Un minimum d'énergie apparait pour un temps fini, ce minimum est de l'ordre de la limite quand le temps tend vers l'infini. Il faut également remarquer que lorsque le temps de contrôle tend vers l'infini, la forme du champ de contrôle est conservée et seulement déplacée vers la droite. Ce comportement est déduit de la figure (6.2). En bas à droite, la courbe en trait plein représente l'évolution du maximum du contrôle en fonction du temps de contrôle tandis que la courbe en trait discontinu représente l'évolution de la position du maximum. On constate que le maximum se déplace vers les temps grands en augmentant le temps de contrôle pendant que la valeur du maximum diminue. Pour finir, il convient de remarquer que pour choisir une valeur du temps de contrôle, on peut trouver un compromis entre l'énergie E et le temps de contrôle t_f. Le produit $t_f \times E$ présente un minimum pour une durée de contrôle finie. L'ensemble des figures montrant l'évolution du problème en énergie en fonction de la durée du contrôle sont réalisées à l'aide d'une méthode d'homotopie (cf section (2.4.4)) sur le paramètre K.

1. Dans la limite où la valeur de la borne devient grande par rapport aux termes dissipatifs, ces derniers peuvent être négligés. L'action du contrôle est unitaire et n'engendre que des rotations. Or l'évolution de x est décrite par $x(t) = x_0 \exp(tuB)$ avec $B = \begin{pmatrix} 0 & -1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}$. On peut alors faire le changement $\theta = tu$. Pour effectuer une rotation de θ, il suffit de considérer un temps de contrôle inversement proportionnel à la valeur de la borne et l'énergie du contrôle ne dépend alors que de l'angle et plus du temps de contrôle.

6.1.3 Conclusion

Chacune des deux méthodes présentent des avantages indéniables. Les méthodes numériques telles que GRAPE ont l'avantage d'utiliser un contrôle constant par morceaux, ce qui décrit mieux la situation expérimentale dans un système en RMN. De plus, on peut utiliser une propagation exacte entre deux pas de temps. La méthode numérique aura donc l'avantage de construire une solution qui adaptera le champ en fonction de la taille de la discrétisation. L'inconvénient est que la solution dépend alors de la discrétisation choisie. Ceci n'est pas possible pour la première approche, le problème géométrique n'étant pas défini comme constant par morceaux. Néanmoins, il a l'avantage de pouvoir s'adapter facilement à des méthodes d'homotopie. En effet, ayant résolu un problème de contrôle géométrique par une méthode de tir, il est ensuite aisé de trouver la solution d'autres problèmes à l'aide des méthodes d'homotopies, qui permettent de trouver d'autres solutions en faisant varier continûment les paramètres du système. Notons que ces deux méthodes sont complémentaires, les méthodes géométriques permettent de bien comprendre la forme de la solution, au contraire des méthodes numériques qui fonctionnent un peu comme des boîtes noires et trouvent des formes de contrôle qui peuvent être compliquées. Ces dernières ont tout de même l'avantage de fonctionner pour des systèmes de grandes dimensions tandis que les méthodes géométriques sont restreintes à des systèmes de plus basses dimensions. La complémentarité des deux approches est illustrée par le couplage que l'on peut réaliser entre les deux méthodes. Ce couplage pourrait être envisagé de deux façons. Tout d'abord les méthodes numériques pourraient permettre de se rapprocher au plus près d'une extrémale, puis utilisant la solution numérique pour initialiser le tir, on pourrait imaginer trouver la solution de systèmes de plus grandes dimensions. Cette idée est utilisée en mécanique spatiale où en général un coût régularisant le problème est utilisé pour approximer la solution optimale et détecter les temps de commutation du contrôle, puis un tir est effectué pour déterminer précisément ces temps. Il faut remarquer que dans ce manuscrit nous avons déjà abordé à deux reprises l'idée inverse. Celle-ci consiste à utiliser un modèle simplifié pour déterminer une solution simple à partir de la méthode géométrique. Cette dernière sert alors à initialiser la méthode numérique pour l'appliquer au modèle complet (voir sections (3.4) et (5.3)).

6.2 Comparaison avec le contrôle local

L'objectif de cette section est de comparer les résultats du problème de saturation de l'aimantation en temps minimum de la méthode géométrique et de la méthode de contrôle local généralisé. Il faut préciser que dans la littérature, on peut trouver la dénomination de contrôle local ou contrôle de

Lyapunov [102, 103, 104, 17]. Ce type de méthode est très utilisé dans le cadre du contrôle quantique de systèmes avec un grand nombre de niveaux. Avant de débuter notre analyse, rappelons les principes du contrôle local.

6.2.1 Introduction au contrôle local

Le contrôle local utilise la dérivée temporelle d'une observable convenablement choisie pour mettre à jour le champ localement au cours du temps afin de faire croître la valeur moyenne de l'observable vers son maximum de façon monotone. C'est-à-dire qu'au cours de l'évolution du système, le champ va être mis à jour en analysant la forme de la dérivée de la valeur moyenne de l'observable à maximiser [105]. Pour illustrer nos propos, choisissons de maximiser la valeur moyenne de l'observable P. Dans le formalisme de la matrice densité, le problème est alors le suivant :

$$\begin{cases} V(t) &= \mathrm{tr}(P\rho(t)) \\ \dot{\rho}(t) &= -\,\mathrm{i}[H_0 + u(t)H_1, \rho(t)] \end{cases}, \tag{6.6}$$

avec pour objectif de trouver $u(t)$ tel que $V(t)$ atteigne sa valeur maximale. Dans la littérature du contrôle local, $V(t)$ est souvent appelée fonction de Lyapunov. La valeur moyenne de l'observable P que l'on cherche à maximiser sera dans la suite la projection sur une cible donnée. La dérivée temporelle de l'observable V est alors :

$$\begin{aligned} \dot{V}(t) &= -\,\mathrm{i}\,\mathrm{tr}(P[H_0, \rho(t)]) - \mathrm{i}\,u(t)\,\mathrm{tr}(P[H_1, \rho(t)]) \\ &= 2\,\mathrm{Im}(\mathrm{tr}(PH_0\rho(t))) + 2u(t)\,\mathrm{Im}(\mathrm{tr}(PH_1\rho(t)))\,, \end{aligned}$$

car $P = P^\dagger$, $H_0 = H_0^\dagger$ et $H_1 = H_1^\dagger$. En choisissant la forme de contrôle suivante :

$$u = K\,\mathrm{sign}(\mathrm{Im}(\mathrm{tr}(PH_0\rho(t))))\frac{\mathrm{Im}(\mathrm{tr}(PH_0\rho(t)))}{\mathrm{Im}(\mathrm{tr}(PH_1\rho(t)))} \quad \text{et} \quad K > 1, \tag{6.7}$$

la dérivée de la valeur moyenne de l'observable à maximiser sera positive à chaque instant ($\dot{V}(t) \geq 0\,\forall t$). En pratique, il suffit d'utiliser un schéma d'intégration de type Runge-Kutta en remplaçant l'expression du contrôle dans l'équation de la dynamique pour propager la condition initiale $\rho(0)$ dans le temps. Des démonstrations sur la convergence de la dynamique vers le maximum de V ainsi que les conditions nécessaires pour assurer cette convergence peuvent être trouvées dans le livre [105] ainsi que dans les références citées à l'intérieur. Il faut tout de même préciser que ces méthodes, effectuant une optimisation locale, peuvent rapidement être limitées si elles sont appliquées à un système présentant

beaucoup de maximum locaux. La dynamique peut alors se retrouver piégée sur ces maximums. L'étude de ces derniers a été réalisée récemment dans le cadre du control landscape par l'équipe de H. Rabitz [106, 107].

Ce bref résumé constitue la base du contrôle local, cependant l'utilisation des dérivées d'ordres supérieurs pour accélérer ou faciliter la convergence vers le maximum de V a aussi été proposée [108]. Comme nous allons le voir, le cas de la saturation par contrôle local est un cas particulier pour cette approche qui nous oblige à utiliser des conditions au second ordre pour pouvoir déterminer la forme du contrôle. Ce type de contrôle n'est pas réalisable en tenant seulement compte de la dérivée première.

6.2.2 Comparaison des méthodes de contrôle optimal et local

Le problème de la saturation du spin en temps minimum est à nouveau choisi. On contraint le champ à rester borné, c'est-à-dire que son amplitude ne peut pas dépasser une limite, notée m. On rappelle que la dynamique en présence de dissipation et pour un champ résonant a la forme suivante :

$$\begin{cases} \dot{y} &= -\Gamma y + uz \\ \dot{z} &= \gamma(1-z) - uy \end{cases} . \tag{6.8}$$

L'objectif étant de saturer le spin, on peut utiliser la fonctionnelle $V = \frac{1}{2}(1 - x^2 - y^2 - z^2)$. Dans le formalisme de la matrice densité, cette fonctionnelle correspond à la distance dans l'espace de Hilbert $\mathrm{tr}\big((\rho - \rho_c)^2\big)$, ce qui est différent du coût utilisé couramment dans le cadre du contrôle quantique qui est $\mathrm{tr}(\rho\rho_c)$. Ce dernier correspond au produit scalaire, ce que l'on peut vérifier en passant dans les coordonnées de la boule de Bloch : $\rho = \mathbb{1} + \sum_i x_i\sigma_i$ avec σ_i les matrices de Pauli. Dans le cas de la saturation, c'est-à-dire pour annuler la norme de l'aimantation, l'utilisation du produit scalaire n'a pas de sens et il faut considérer la distance.

Pour utiliser la méthode du contrôle local, il faut calculer la dérivée temporelle de V par rapport au temps. On trouve alors :

$$\dot{V} = \Gamma y^2 - \gamma(1-z)z. \tag{6.9}$$

Cette quantité est indépendante de u car celui-ci n'induit que des transformations unitaires (l'action du contrôle est une rotation pure). $\dot{V}$ étant indépendant de u, V est invariant sous l'action du contrôle. Cela signifie que le contrôle servira seulement à déterminer le lieu où la dissipation (la partie non unitaire) doit agir pour atteindre le centre de la boule. En d'autres termes, il ne peut pas modifier V de manière directe mais seulement de manière indirecte. Il faut donc utiliser la dérivée seconde de V par rapport au temps afin de déterminer la façon de faire varier le contrôle [108]. La dérivée seconde

de V s'écrit comme suit :

$$\ddot{V} = -2\Gamma^2 y^2 - \gamma^2(1-2z)(1-z) - uy(2\Gamma z + \gamma(1-2z)), \tag{6.10}$$

$\ddot{V}$ correspond à la courbure temporelle de $V(t)$. Pour maximiser V, il suffit de maximiser la dérivée $\dot{V}$, cela revient à choisir $u(t)$ tel qu'à chaque instant la dérivée seconde $\ddot{V}$ soit maximale. L'utilisation de la dérivée seconde explique le qualificatif de contrôle local généralisé. Il s'agit en réalité d'un contrôle quasi local car la dérivée seconde est considérée et donc deux pas de temps sont utilisés pour déterminer le contrôle. L'expression de $\ddot{V}$ peut être décomposée de la façon suivante :

$$\ddot{V} = \nu + u\mu, \tag{6.11}$$

avec ν la courbure en absence de champ et μ une fonction dépendante de la position. Pour maximiser la dérivée $\dot{V}$, il suffit alors de choisir $u = m \operatorname{sign} \mu$, avec m la borne du contrôle. Cependant, il faut faire attention au cas $\mu = 0$ et distinguer le cas instable du cas stable. Par exemple, à l'équilibre (ou plus généralement sur le lieu $y = 0$) $\mu = 0$, l'instabilité signifie qu'en se déplaçant d'une petite quantité, le contrôle local va trouver une forme de contrôle telle que $\mu = 0$ ne soit pas conservé. Dans le cas stable, la forme du contrôle va permettre de conserver $\mu = 0$. Ce propos est illustré par la figure (6.3), qui montre que $\mu = 0$ sur les deux lignes du plan (y, z), $y = 0$ et $z = z_0$. Notons que ces lignes correspondent aux lignes singulières du problème de contrôle optimal de la section (3.3). On appelle B un point de coordonné (y, z) sur une de ces lignes et A un point voisin de B de coordonnée $(y + \epsilon_y, z + \epsilon_z)$. Ces lignes sont stables si $(\epsilon_y, \epsilon_z).(\dot{y}, \dot{z})(A) > 0$ et instable si $(\epsilon_y, \epsilon_z).(\dot{y}, \dot{z})(A) < 0$. c'est-à-dire que la ligne est stable si en s'écartant de la ligne, le vecteur vitesse pointe en direction de celle-ci.

Numériquement, en appliquant la méthode de contrôle local précédente, on obtient le résultat de la figure (6.4) à gauche, en bleu le champ obtenu oscille rapidement lorsque le système passe autour de la singulière. Cela signifie que l'aimantation se déplace autour de la ligne singulière avec un mouvement de va et vient. Comme le pas de temps est fini, μ ne pas être exactement nul. En choisissant un pas de temps très petit pour intégrer, une fréquence très rapide apparaît. Cette fréquence rapide peut être moyennée en utilisant une moyenne glissante pondérée par une fonction gaussienne. On note alors :

$$\bar{u}(t) = \int_0^T \mathrm{d}\tau u(\tau) f(t-\tau), \tag{6.12}$$

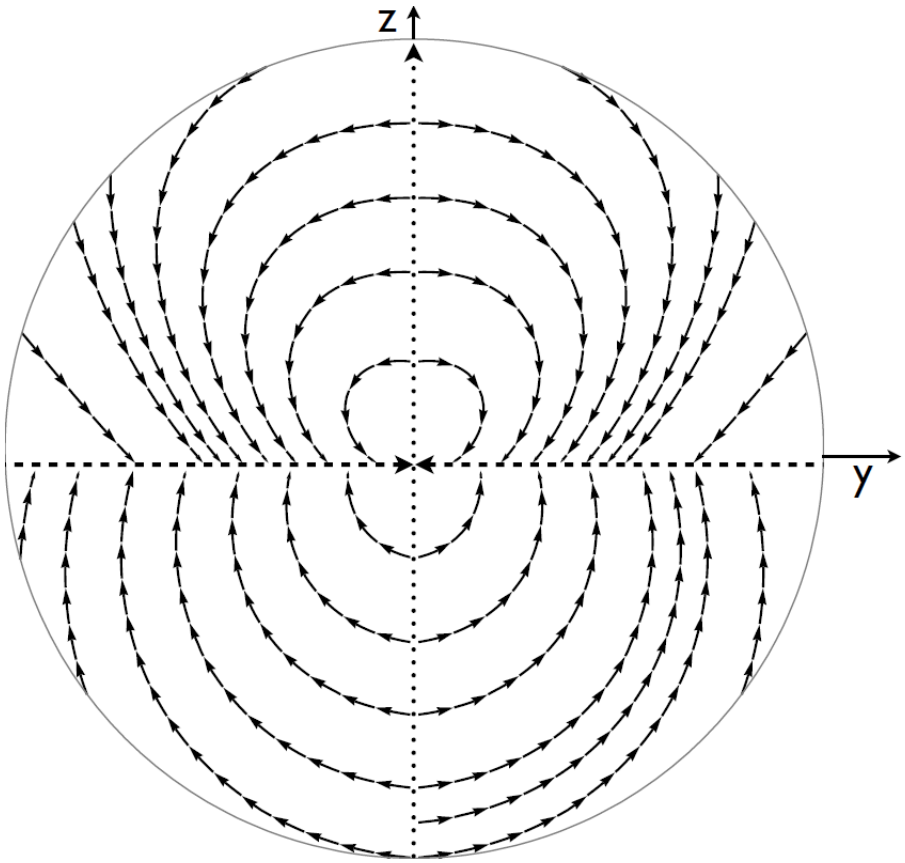


Fig. 6.3: Champ de vecteur $(\dot{y}, \dot{z})$ le long de plusieurs trajectoires $(y(t), z(t))$. On constate que la ligne verticale est instable tandis que la ligne horizontale est stable.

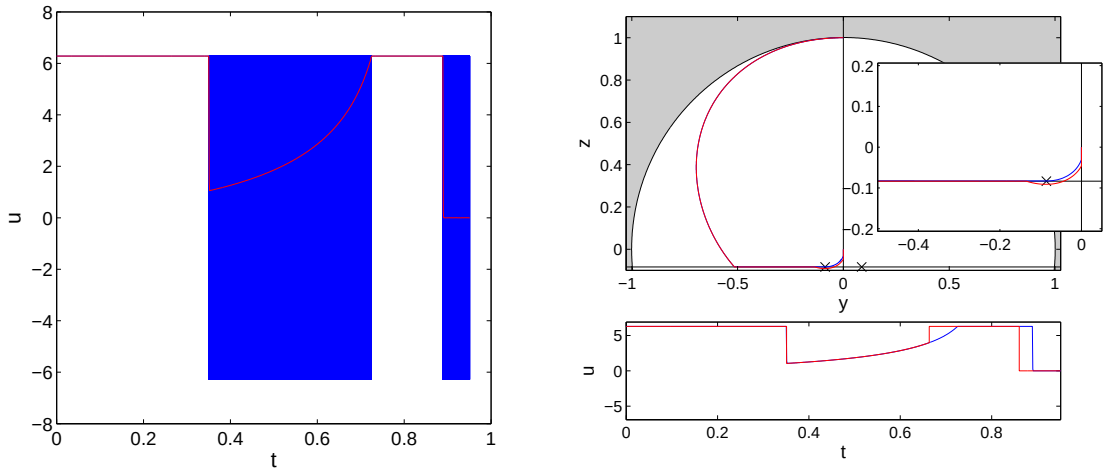


Fig. 6.4: (Gauche) Comparaison du champ u en bleu et du champ moyenné $\bar{u}$ en rouge. (Haut-droite) Trajectoire géométrique en rouge et trajectoire obtenue par contrôle local en bleu. L'encart correspond à un agrandissement de la zone autour de l'origine. (Bas-droite) Loi de contrôle associée aux trajectoires ci-dessus. Les paramètres utilisés sont $T_1 = 61.9$ms et $T_2 = 8.9$ms.

avec $f(t) = \exp\left(-\left(\frac{t}{\sigma}\right)^2\right)$. Après le filtrage, la fréquence rapide est éliminée et la forme de contrôle en rouge sur la figure (6.4) à gauche est obtenue. Les oscillations en moyenne ne s'annulent pas et une forme comparable à la forme du champ singulier apparaît, c'est ce que l'on peut vérifier en bas à droite de la figure (6.4) où la courbe bleu correspond au contrôle local et la courbe rouge correspond au contrôle issu de l'analyse géométrique. De $t = 0.35$ à $t = 0.65$, les deux courbes se recouvrent parfaitement. En diminuant le pas de temps servant à l'intégration, la fréquence du champ non moyenné tend vers l'infini. Dans la limite d'un pas de temps infinitésimal, les fluctuations de μ vont s'annuler et on obtient un point d'équilibre stable. On peut rechercher la valeur de $\bar{u}(t)$ telle que $\mu = 0$ soit conservé. Pour être sur un point stable, il suffit de vérifier les conditions $\mu = 0$ et $\dot{\mu} = 0$. On trouve à partir de $\mu = 0$ la singulière verticale $y = 0$ et horizontale $z = \frac{-\gamma}{2(\Gamma - \gamma)}$. A l'aide de la seconde condition, on trouve $u = \frac{\gamma(2\Gamma - \gamma)}{2(\Gamma - \gamma)}\frac{1}{y}$, c'est-à-dire la forme du champ singulier obtenue par contrôle géométrique dans la section (3.3).

Dans la section (3.3) la singulière horizontale a été interprétée comme le lieu où la vitesse de dissipation radiale est maximale. Or le contrôle local cherche à augmenter V le plus rapidement possible (car il suit il tente de maximiser la courbure $\ddot{V}$). Cela justifie le fait qu'il utilise le lieu singulier. Néanmoins, ce dernier point pourrait être problématique. Imaginons un système physique possédant une singulière verticale et une singulière horizontale mais avec une singulière horizontale lente, alors dans ce cas, le contrôle local tomberait dans un piège et suivrait une solution se déplaçant lentement en direction de la cible.

Sur la figure (6.4) en haut à droite, on peut voir les trajectoires associées à chaque méthode, avec en bleu, la trajectoire obtenue par contrôle local et en rouge, la trajectoire obtenue par l'analyse géométrique. On constate que les deux trajectoires aboutissent au centre de la boule de Bloch, seule la trajectoire locale utilise la ligne singulière jusqu'à la limite d'admissibilité, c'est-à-dire $u = m$. C'est ici la différence majeure entre le contrôle local et l'analyse géométrique du problème dans le cadre du PMP. Le contrôle local va uniquement regarder localement dans quelle direction se diriger pendant que, dans le cas du contrôle optimal, on peut construire géométriquement la solution dans un espace élargi par la variable adjointe. Dans cet espace, concaténer des arcs de trajectoires signifie qu'il doit y avoir continuité de (x, p) en passant d'un arc à l'autre. Ainsi, pour pouvoir entrer et suivre la singulière, il faut vérifier que la fonction de commutation Φ soit nulle ainsi que sa dérivée. On obtient alors une solution qui nous oblige à quitter la singulière avant l'admissibilité. La différence des durées de contrôle est alors d'environ 5×10^{-4} pour une durée de contrôle de la solution géométrique de 0.95098. En revanche, expérimentalement, l'erreur entre les deux méthodes serait négligeable car la précision des

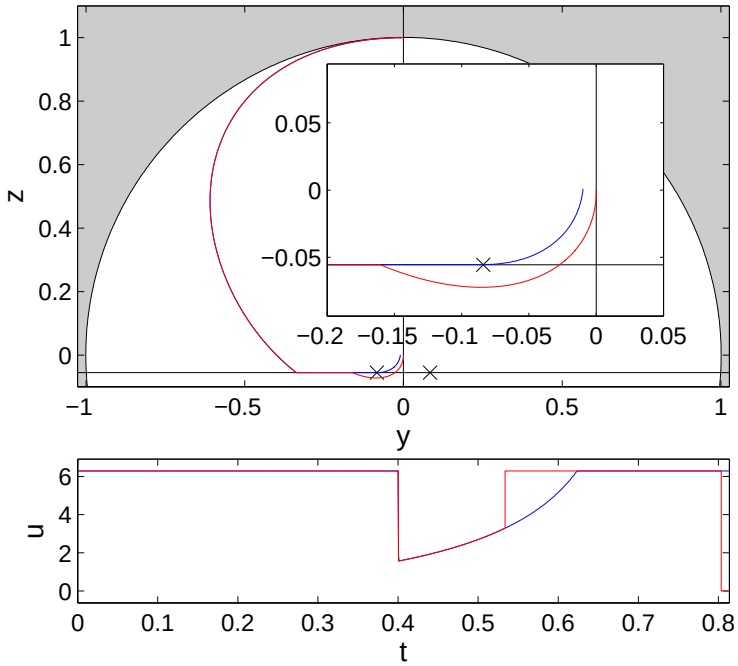


Fig. 6.5: Même représentation que dans la figure (6.4) mais avec les paramètres $T_1 = 61.9$ms et $T_2 = 6.2$ms. Dans ce cas le contrôle local n'atteint pas la cible.

expériences est de l'ordre de quelques pourcents.

Sur la figure (6.5), les paramètres dissipatifs ont été modifiés afin de mettre en évidence une autre différence. Dans ce cas, on a $T_1 = 61.9$ms et $T_2 = 6.2$ms. On constate alors que la trajectoire obtenue par contrôle local n'est pas identique à la trajectoire obtenue par la méthode géométrique au niveau du point d'admissibilité. En effet, la trajectoire de contrôle local continue jusqu'au point d'admissibilité puis utilise un bang. Le fait de ne pas quitter la singulière ne l'autorise pas ensuite à trouver une solution pour aller au centre de la boule, la trajectoire s'approche seulement à 8×10^{-2} de la cible. Expérimentalement, la précision d'une expérience étant de l'ordre du pourcent, l'erreur serait négligeable mais on pourrait imaginer chercher un jeu de paramètres tel que cette erreur soit encore plus grande.

Sur la figure (6.6), les paramètres dissipatifs sont les mêmes que sur la figure (6.5), la différence se situe au niveau du point initial. Sur la dernière figure, le point de départ est le point d'équilibre $(y = 0, z = 1)$ tandis que, sur la première, le pôle sud $(y = 0, z = -1)$ est choisi comme condition initiale. A nouveau la différence est négligeable et se situe seulement sur le lieu où la trajectoire quitte la singulière horizontale.

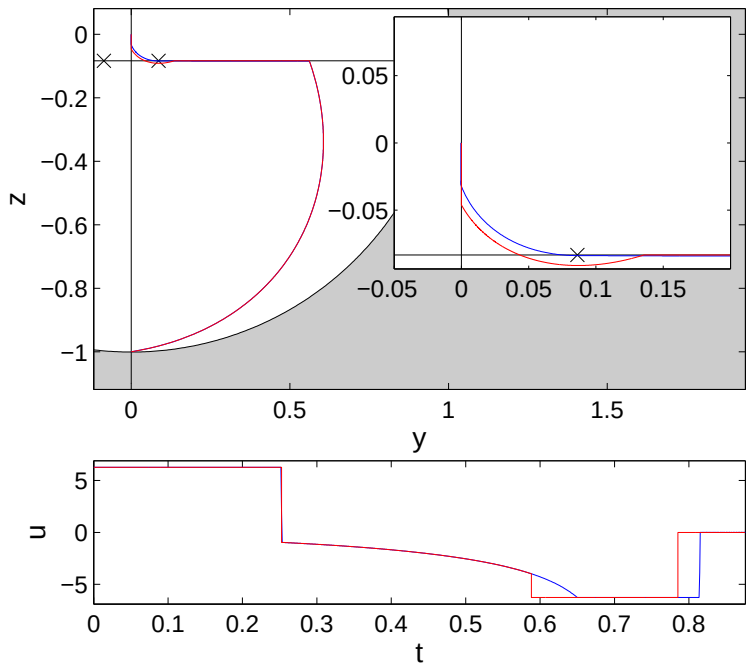


Fig. 6.6: Même représentation que dans la figure (6.5) mais en partant du pôle sud ($y = 0, z = -1$) au lieu du point d'équilibre ($y = 0, z = 1$). Dans ce cas, le contrôle local n'atteint pas la cible.

6.2.3 Conclusion

Nous avons pu mettre en avant au travers de cette étude les avantages du contrôle géométrique. Ce dernier, travaillant dans un espace plus large que la méthode de contrôle local, lui permet de trouver des solutions plus globales et non accessibles en l'état par une analyse locale de l'évolution de l'observable. Le contrôle local peut même passer à côté de la cible sans pouvoir l'atteindre. Une étude plus poussée permettrait d'éclairer un peu plus les limites de la méthode de manière quantitative. Il serait également souhaitable de perfectionner la méthode afin de pouvoir atteindre la cible à coup sûr. Néanmoins, il ne faut pas oublier que les méthodes de contrôle local possèdent l'avantage de pouvoir fonctionner sur des systèmes de taille beaucoup plus grande par rapport aux méthodes de tir combinées à l'analyse géométrique. Une perspective envisageable serait comme dans la section précédente, d'imaginer l'utilisation d'une combinaison avantageuse de ces deux méthodes afin d'obtenir la précision d'une méthode de tir et la possibilité de contrôler un système de grande taille.

Chapitre 7

Conclusion

Tout au long de ces cinq chapitres, plusieurs aspects du contrôle optimal des systèmes quantiques ont pu être abordés. Deux cas très différents ont été étudiés dans les chapitres 2 et 3. Le premier chapitre traitait le contrôle des systèmes quantiques à dynamique lente (par rapport à la durée caractéristique de mise en forme du contrôle) et le second, le cas d'une dynamique rapide.

Dans le chapitre 2, les méthodes de contrôle optimal géométrique ont pu être appliquées à la dynamique des systèmes de spins. Ceci nous a permis d'obtenir dans le domaine de la spectrométrie RMN et de l'IRM de nouvelles séquences de contrôle pour préparer un échantillon. Le problème de la saturation de l'aimantation en temps minimal a été abordé et résolu dans le cas d'un spin en résonance avec le contrôle mais également quand le système présente une non-linéarité. Ce résultat est non-trivial car du point de vue du contrôle optimal, le concept de pont entre deux trajectoires singulières a été mis en évidence. Pour mémoire, ce pont est une trajectoire bang qui permet de passer d'une singulière à une autre. Ce résultat a ensuite pu être utilisé en imagerie dans le traitement de la maximisation du contraste entre deux espèces chimiques ayant des paramètres dissipatifs différents. Le dernier point de cette étude a été l'implémentation expérimentale systématique avec un accord théorie/expérience extrêmement probant. Enfin, il faut souligner que les systèmes à dynamique lente autorisent l'utilisation de séquence de contrôle à variation abrupte de type bang-bang.

Le chapitre 3 se démarque du précèdent par la dynamique rapide du système considéré. Les contrôles étant des lasers avec des durées courtes, ils ne permettent pas une mise en forme temporelle du contrôle. Pour cette raison, notre premier travail a été l'introduction d'un nouvel outil permettant de construire un champ de contrôle respectant la contrainte de mise en forme spectrale de l'enveloppe de l'impulsion laser, la mise en forme indirecte se réalisant dans le plan de Fourier. Un algorithme monotone généralisé a été développé afin de pouvoir traiter ces problèmes avec des contraintes spectrales. Le résultat est intéressant car il permet, soit d'éliminer une fréquence indésirable de l'impulsion pour, par exemple, interdire une transition directe entre deux niveaux, soit d'imposer des contraintes spectrales fortes liées aux techniques de pulse-shaping. Les outils de contrôle optimal permettant de trouver une forme de contrôle qui est efficace mais assez complexe, il est important d'envisager des

stratégies de contrôle beaucoup plus simples comme une combinaison d'impulsions gaussiennes en phase et/ou ayant un délai relatif ainsi qu'un ratio d'intensité adapté. C'est ce type de stratégie qui a été développée et utilisée pour pouvoir atteindre l'état moléculaire délocalisé dans un plan. En effet, nous ne nous sommes pas restreints dans ce chapitre au contrôle optimal, c'est-à-dire rechercher des formes de champ de contrôle optimisant un critère donné. De nouveaux concepts liés à la rotation moléculaire ont été développés. Le premier est le concept de délocalisation planaire et le second, qui généralise le premier, correspond à un état pour lequel la densité de probabilité de la molécule forme une roue dentée en rotation autour de l'axe orthogonal au plan de délocalisation. Ces études ont permis de développer les méthodes d'identification d'états cibles, ces états étant définis comme des états maximisant ou minimisant la valeur moyenne quantique d'une observable donnée. Le dernier point à mentionner est la mise en pratique expérimentale de la stratégie de contrôle permettant de délocaliser une molécule dans un plan. Un résultat expérimental très probant a été obtenu malgré la température relativement élevée de l'échantillon. Ce dernier point montre l'intérêt de notre solution qui est donc robuste vis-à-vis de la température.

Le chapitre 2 a permis d'introduire des outils de contrôle géométrique dans le cadre du contrôle quantique tandis que le chapitre 3 envisageait plutôt l'utilisation de méthodes numériques. Le chapitre 4 réunit ces deux approches dans le cadre du contrôle en temps minimum de la création d'une superposition macroscopique d'états dans un condensat de Bose-Einstein. Une utilisation complémentaire de ce type avait déjà été mentionnée dans le chapitre 2 lors du traitement de la saturation de l'aimantation en temps minimum en présence de non-linéarité. Pour construire la séquence de contrôle adéquate, un modèle semi-classique dérivé du modèle quantique a été utilisé. Le modèle semi-classique étant de dimension deux, l'analyse géométrique du problème de contrôle en temps minimum est alors possible. Cela permet d'une part d'obtenir une estimation du temps de contrôle à utiliser dans le cas quantique mais également d'avoir une première solution de contrôle, qui par la suite, sert à initialiser un algorithme monotone. Le temps minimum du problème semi-classique évolue comme $1/N$ avec N le nombre de particules dans le condensat. Ensuite, des séquences de contrôle plus complexes ont été construites pour pouvoir atteindre l'état cible avec une fidélité de 99%. Ce chapitre met donc en avant la complémentarité des deux approches. La première permettant de construire une solution simple et relativement efficace, mais également d'avoir des résultats analytiques donnant des estimations pour le problème quantique. La seconde permet de trouver des formes de champ de contrôle efficaces mais plus complexes à partir des résultats du contrôle géométrique.

Le dernier chapitre, quant-à lui, permet de conclure avec une comparaison entre le contrôle géométrique et deux autres méthodes de contrôle. Dans un premier temps, une étude comparant les

résultats des méthodes de contrôle géométrique et numérique a été effectuée. Le résultat de cette comparaison ne donne un avantage à aucune des méthodes, chacune ayant ses forces et ses faiblesses. Cette partie se conclut par une analyse de leur complémentarité. Dans le domaine du contrôle quantique, cette complémentarité devra être exploitée autant que possible. La seconde comparaison est réalisée entre une méthode de contrôle local généralisée et le contrôle géométrique. L'étude est menée sur l'exemple de la saturation en temps minimum. Encore une fois, une conclusion sur la complémentarité des méthodes est faite. Cependant, il faut remarquer qu'une étude locale ne permet pas d'obtenir la solution globalement optimale même si les deux solutions sont proches. Cela n'est possible que par l'utilisation du contrôle géométrique et du Principe du Maximum de Pontryagin.

Cette thèse a permis d'introduire et d'appliquer de nouvelles techniques de contrôle optimal sur des systèmes quantiques. Elle a permis de mettre en lumière les différences majeures existant entre les systèmes où le contrôle peut être mis en forme en temps ou en fréquence. Traiter une grande variété de systèmes quantiques nous a permis d'aboutir au fait que le couplage des méthodes de contrôle était un point important, les chapitres 4,5 ainsi que le chapitre 3, le mettent fortement en valeur. Dans ce dernier chapitre, une stratégie de contrôle simple est établie en couplant les résultats de contrôle obtenu avec des méthodes déterministes et une méthode heuristique (un algorithme évolutionnaire).

De nombreuses pistes sont envisageables pour poursuivre ce travail. La première est une collaboration avec des expérimentateurs pour tester les résultats qui ne l'ont pas été. Notamment, un objectif sera de déterminer un champ de contrôle à l'aide de l'algorithme monotone avec contraintes spectrales pour pouvoir atteindre un état roue. La solution pourrait alors être implémentée à l'aide des méthodes de pulse-shaping. Ces états sont extrêmement sensibles à la température mais il existe expérimentalement des méthodes pour refroidir les molécules dans l'état rotationnel fondamental. Un tel projet serait stimulant du point de vue théorique et expérimental. Un tel travail est envisagé en collaboration avec le groupe de H. Stapelfeldt, au Danemark.

L'implémentation des solutions obtenues dans le cas de la manipulation d'un condensat de Bose-Einstein à deux composantes serait aussi intéressante. Préalablement, il sera nécessaire de chercher des séquences de contrôles calculées à partir de modèle prenant en compte la dissipation [99]. La dissipation correspond ici à la perte de particules au cours du temps. Une dérivation d'un modèle semi-classique serait très intéressant pour pouvoir traiter le problème dissipatif d'un point de vue géométrique car une analyse numérique pur n'apporterait que peut d'informations sur l'origine de la forme du contrôle. Ce dernier point est très intéressant pour donner une interprétation physique à l'origine de la forme du contrôle. Ce travail pourrait être réalisé par un des groupes d'expérimentateurs de Heidelberg qui a déjà réalisé des expériences similaires [109, 93] mais sans utiliser des résultats de contrôle optimal.

Du point de vue du contrôle optimal, dans le chapitre 4, nous avons proposé une méthode de couplage entre les méthodes numériques et géométriques. Un développement dans cette direction serait très bénéfique dans le cadre du contrôle quantique. La résolution de problème de contrôle optimal dans ce domaine est complexe, car souvent, le nombre de dimensions est trop élevé pour effectuer une approche géométrique et seule une approche numérique est considérée. Cependant, l'analyse géométrique permet d'extraire plus d'informations. Le couplage des méthodes de contrôle optimal géométrique/numérique a été abordé, il serait intéressant d'envisager l'approche réciproque numérique/géométrique. Cela permettrait de pouvoir déterminer les limites physiques de la solution de contrôle et également de bénéficier de tous les outils de contrôle géométrique existant tels que les tests d'optimalité du second ordre des solutions. Pour pouvoir effectuer ce couplage plus facilement, il faudrait que les problèmes traités sous les deux points de vue soient identiques du point de vue mathématique. Il est donc nécessaire de développer des algorithmes numériques prenant en compte des contraintes sur la borne du champ de manière propre, c'est-à-dire que la saturation du contrôle doit être intrinsèque à l'algorithme et qu'elle ne se fasse pas à l'aide d'un test booléen sur la valeur du champ. Une approche par algorithme monotone pourrait être envisageable en utilisant un nouveau coût permettant de régulariser le problème.

Une autre piste à poursuivre est celle du contrôle optimal dans les systèmes RMN/IRM. Dans les sections (3.4) et (3.5), les problèmes d'inhomogénéité du champ sont apparus comme extrêmement pénalisants. Un traitement numérique pur du problème donne de bons résultats mais aucune information sur l'origine de la structure du contrôle n'est apportée et il est impossible de faire une classification des solutions obtenues. Un problème simplifié pourrait être envisagé avec quelques spins afin d'effectuer une approche géométrique du problème. Pour obtenir un champ robuste (*i.e.* indépendant de la distribution de detuning, voir section 3.5), on pourrait envisager de trouver une solution large bande, c'est-à-dire qu'elle aurait le même effet sur une certaine plage de detuning [39]. Cette question est cruciale car la section (3.5) traitant le contraste a révélé que, dans ce genre de système, l'inhomogénéité est courante et, de plus, la forme de la distribution dépend fortement de l'appareil et des conditions expérimentales.

Jusqu'à présent, des résultats préliminaires ont été obtenus pour le problème de contraste. Pour pouvoir imaginer une implémentation dans un logiciel commercial d'IRM, il faudrait pouvoir établir une classification des solutions en fonction des valeurs des paramètres dissipatifs. De plus, les solutions trouvées devront être robuste vis-à-vis de l'inhomogénéité, ce qui n'est pas le cas des solutions actuelles. Un travail difficile mais motivant sur ce thème reste donc à accomplir.

Pour terminer, nous sommes également intéressés par un nouveau modèle à quatre dimensions,

comme pour le contraste. Autant du point de vue de l'information quantique que du point de vue de la RMN, le transfert d'excitation du spin nucléaire d'une espèce chimique vers une autre est très important. En RMN, ce transfert d'excitation est la base de la spectroscopie bidimensionnelle. Dans le cadre de l'information quantique, ce problème correspondrait au transfert d'informations d'un qubit vers un second qubit. Ce problème traité en temps minimum permettrait dans le cadre de la spectrométrie 2D de diminuer le temps d'acquisition du spectre. Ce dernier point n'est donc pas le prolongement d'une tâche déjà réalisée mais une application des outils de contrôle géométrique à un nouveau système pour tenter d'en découvrir ses limites.

Chapitre 8

Annexe

8.1 Détermination des points fixes de l'équation de Bloch non-linéaire

On étudie dans cette section les points fixes de l'équation de Bloch non-linéaire (voir section 3.4). Les quatre paramètres qui permettent de caractériser un système de spin dissipatif en présence de non-linéarité sont : m, γ, Γ, k et $\Gamma = \gamma/2 + \epsilon$ avec $\epsilon \geq 0$. La position des points fixes est caractérisée par l'équation :

$$y^3 + 2\frac{m}{k}y^2 + \frac{\left(k\gamma + m^2 + \gamma\left(1/2\gamma + \epsilon\right)\right)}{k^2}y + \frac{m\gamma}{k^2} = 0. \tag{8.1}$$

On pose :

$$\begin{cases} b &= 2\dfrac{m}{k} \\ c &= \dfrac{\left(k\gamma + m^2 + \gamma\left(1/2\gamma + \epsilon\right)\right)}{k^2} \\ d &= \dfrac{m\gamma}{k^2} \end{cases}. \tag{8.2}$$

Pour que cette équation possède trois solutions réelles, les conditions suivantes doivent être vérifiées :

$$\begin{cases} b^2 - 3c &\geq 0 \\ \dfrac{\partial f(x_\pm)}{\partial x} &= 0 \\ f(x_+)f(x_-) &\leq 0 \\ x_\pm &= \dfrac{-b \pm \sqrt{b^2 - 3c}}{2} \end{cases}. \tag{8.3}$$

La première équation est équivalente à :

$$k \leq \frac{1}{3}\frac{m^2 - 3/2\gamma^2 - 3\gamma\epsilon}{\gamma}. \tag{8.4}$$

Ceci revient à poser : $k = A + \upsilon$ avec $\upsilon \leq 0$. L'équation $f(x_+)f(x_-)$ devient :

$$a_1\epsilon^2 + a_2\epsilon + a_3 = 0, \tag{8.5}$$

avec :

$$\begin{cases} a_1 &= 54\gamma^2 m^2 \\ a_2 &= 54\gamma^3 m^2 - 4\gamma m^4 - 36 m^2\gamma^2 \upsilon \\ a_3 &= \frac{27}{2}\gamma^4 m^2 + 6m^2\upsilon^2\gamma^2 + \frac{2}{27}m^6 - 2\gamma^2 m^4 + \frac{4}{3}m^4\upsilon\gamma + 8\upsilon^3\gamma^3 - 18m^2\gamma^3\upsilon \end{cases} . \tag{8.6}$$

Ceci permet alors d'identifier $\epsilon_\pm$. Le paramètre a_1 étant négatif, on en déduit que la condition $f(x_+)f(x_-)$ est vérifiée si $\epsilon \in [\epsilon_-, \epsilon_+]$. Les conditions pour que l'on ait trois points fixes sont :

$$\begin{cases} \epsilon &\in [\epsilon_-, \epsilon_+] \\ \upsilon &\leq 0 \end{cases} . \tag{8.7}$$

Il faut noter que si $\epsilon = \epsilon_{pm}$ alors les deux points fixes supplémentaires sont dégénérés et que si $\upsilon = 0$ alors il n'y a qu'un point fixe. Pour résumer, on a :

1. un point fixe si :

$$\begin{cases} \upsilon &\geq 0 \end{cases} \tag{8.8}$$

$$\begin{cases} \upsilon &< 0 \\ \epsilon &\notin [\epsilon_-, \epsilon_+] \end{cases} \tag{8.9}$$

$$\begin{cases} \upsilon &< 0 \\ \epsilon_+ &< 0 \end{cases} . \tag{8.10}$$

2. deux points fixes si : $\epsilon = \epsilon_+ > 0$.

3. trois points fixes si :

$$\begin{cases} \upsilon &< 0 \\ \epsilon &\in [\epsilon_-, \epsilon_+] \\ \epsilon_+ &> 0 \end{cases} . \tag{8.11}$$

Pour finir, il faut mentionner que le point d'équilibre est divisé en trois points si $\upsilon \leq -\frac{m^2}{3\gamma}$.

8.2 Construction de la synthèse optimale dans le cas non-linéaire

Dans cette annexe, on détaille les différents calculs numériques à effectuer pour pouvoir construire la synthèse optimale pour l'équation de Bloch dissipative, non-linéaire et résonante avec le champ. On a :

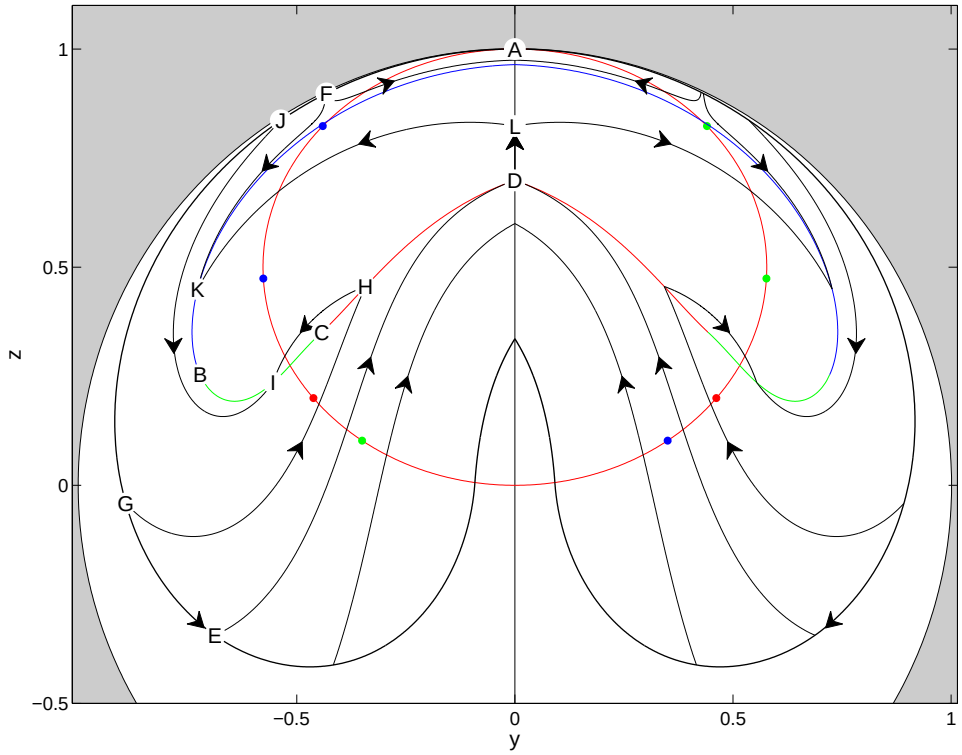


Fig. 8.1: Les points bleus, verts, rouges sont respectivement les points fixes associés à $m = 1$, $m = -1$, $m = 0$. Les lignes vertes et bleues correspondent au cut-locus. La ligne rouge prolongeant la ligne verte est la ligne de switch. L'ellipse rouge correspond au lieu de colinéarité.

1. Recherche du point D (trajectoire $BB(t_1, t_2)$, c'est-à-dire la trajectoire AED) :

$$S(t_1, t_2) = (\Phi(t_2), y(t_2)) \,. \tag{8.12}$$

2. Recherche de la ligne de switch (trajectoire $BB(t'_1, t'_2)$, c'est-à-dire des trajectoires du type AGH). On effectue une continuation en utilisant t'_1 comme paramètre et le couple (t_1, t_2) comme condition initiale :

$$S_{t'_1} = \Phi(t'_2) \tag{8.13}$$

3. Recherche du point en dessous de A (recouvrement ou par abus de langage overlap des trajectoires $BBS(t_1, t_2, t_3)$, AEDA' et $BB(t_4, t_5)$, AFA'). La fonction de tir utilisée est :

$$S(t_3, t_4, t_5) = (t_1 + t_2 + t_3 - t_4 - t_5, y_{BBS}(t_3) - y_{BB}(t_5), z_{BBS}(t_3) - z_{BB}(t_5)). \tag{8.14}$$

4. Recherche de la ligne d'overlap entre les trajectoires $BB(t_4, t_5)$ et $BB(t_1, t_2, t'_3, t'_4)$. On choisit t'_3 comme paramètre de continuation (variation de t_3 à 0) et on utilise la fonction de tir suivante :

$$S_{t'_3}(t'_4, t_4, t_5) = (t_1 + t_2 + t'_3 + t'_4 - t_4 - t_5, y_{BBSB}(t'_4) - y_{BB}(t_5), z_{BBSB}(t'_4) - z_{BB}(t_5)), \tag{8.15}$$

avec les trajectoires BBSB du type AEDLK et BB du type AJK.

5. Recherche de la seconde ligne d'overlap entre les trajectoires $BB(t_4, t_5)$ du type AJI et $BBB(t_1, t'_2, t'_3)$ du type AGHI. On choisi t_4 comme paramètre de continuation (départ de t_2) et on utilise la fonction de tir suivante paramétrée par t_4 :

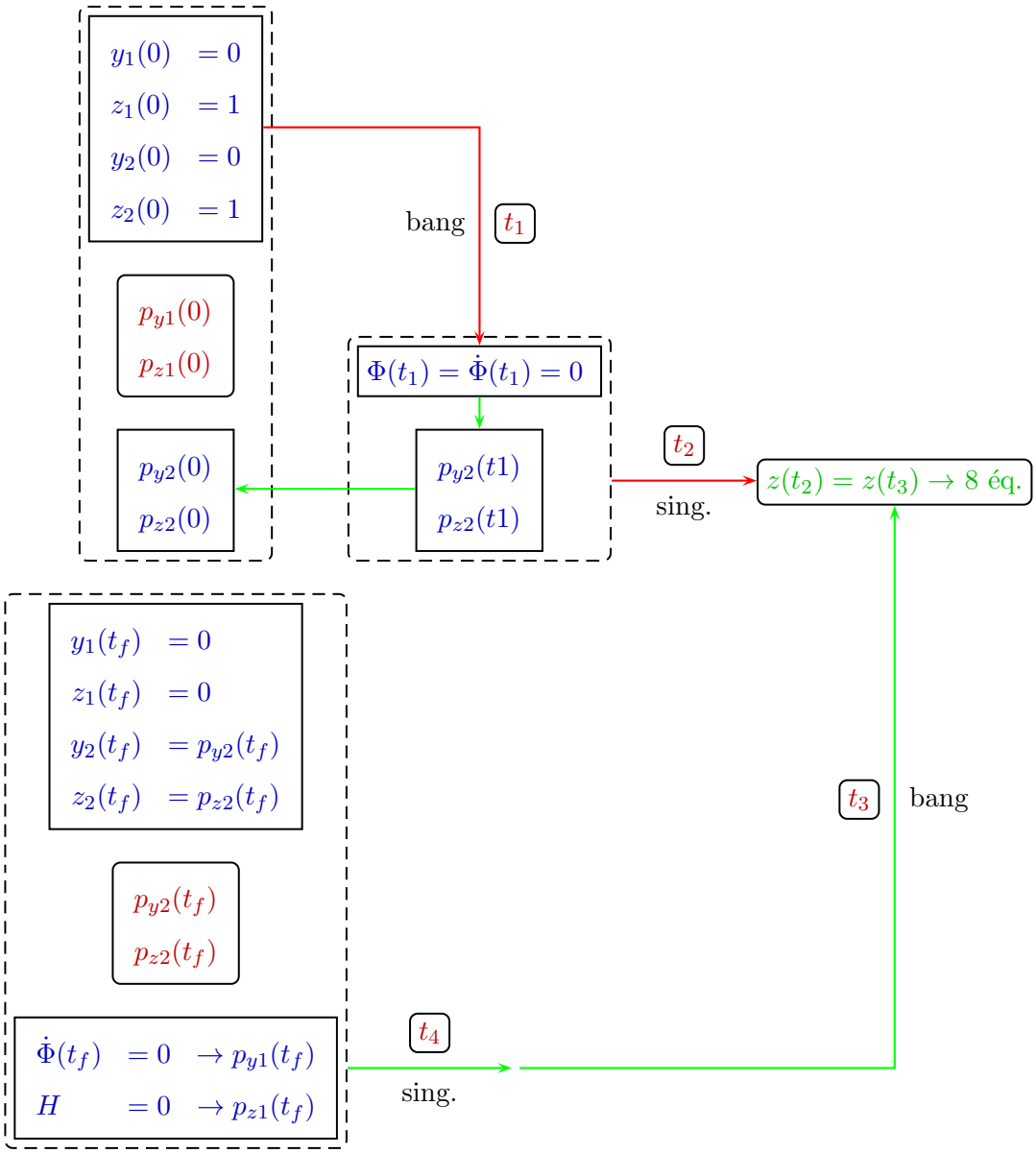
$$S_{t_4}(t'_2, t'_3, t_5) = (t_1 + t_2 + t'_3 - t_4 - t_5, y_{BBB}(t'_3) - y_{BB}(t_5), z_{BBB}(t'_3) - z_{BB}(t_5)). \tag{8.16}$$

8.3 Fonction de tir du problème du contraste

8.3.1 Légende

On détaille dans cette section la résolution numérique du problème de contraste dans le cas de la structure Bang-Singulière-Bang-Singulière. Les flèches rouges correspondent à une propagation en avant $(0 \to t)$ et les flèches vertes à des propagations en arrière $(0 \to -t)$. Le texte bleu correspond aux données du problème, le rouge aux inconnus et le vert aux équations.

8.3.2 Fonction de tir en temps libre



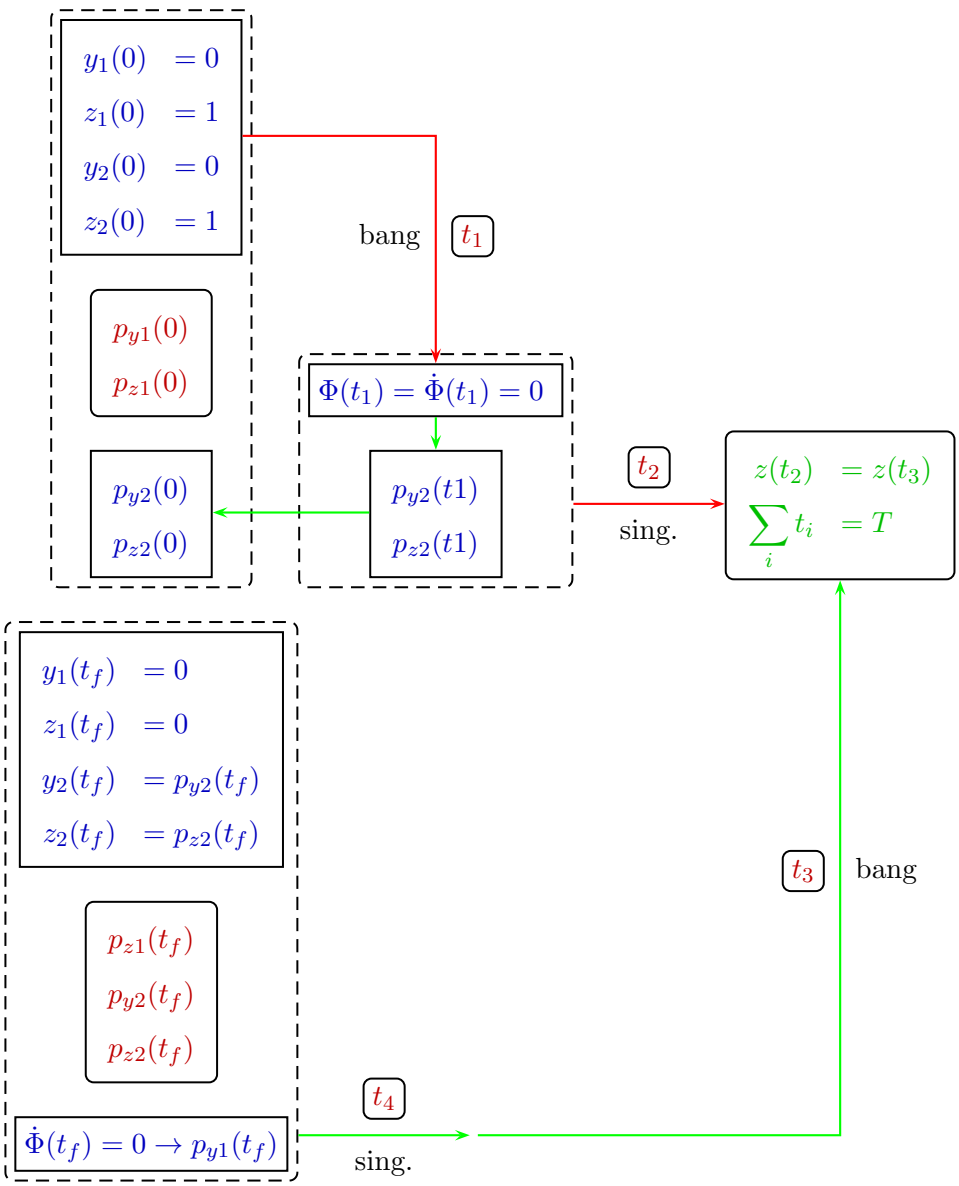
L'objectif de cette fonction de tir est de résoudre le problème posé dans le chapitre (3). Dans ce chapitre, nous avons cherché une solution ayant une structure BSBS. Seulement, pour réaliser le tir, se pose la question de la continuité de la solution dans l'espace des phases. On reformule le problème pour pouvoir le résoudre. Au lieu de chercher à vérifier des conditions finales, on propage en avant la première partie BS et en arrière la seconde partie BS.

En haut à gauche, on propage en avant les conditions initiales de l'espace (q_1, q_2) (ligne bleu). Pour pouvoir rentrer sur le lieu singulier, on impose de vérifier $\Phi(t_1) = \dot{\Phi(t_1)} = 0$, cela permet de déterminer $p_2(t_1)$, ($p_2(0)$ est déterminé à l'aide d'une propagation arrière). A ce stade $p_1(0)$ reste inconnu. On propage alors la solution le long de la singulière.

Ensuite en bas à gauche, on utilise tout ce qui est connu au temps final, à savoir $H = 0$, $\Phi = \dot{\Phi} = 0$,

ainsi que $q_1 = \overrightarrow{0}$ et les conditions de transversalités sur p_2. Cela permet de n'avoir que $p_2(t_f)$ inconnu à l'instant final. Il suffit alors de chercher $p_1(0)$, $p_2(t_f)$ ainsi que t_1, t_2, t_3 et t_4 tels que l'on vérifie $z(t_2) = z(t_3)$.

8.3.3 Fonction de tir en temps fixe



Le principe est identique à la section précédente. Seules les conditions terminales sont modifiées. En effet, le temps étant fixé, la condition $H = 0$ n'est plus valable, cela rajoute une inconnue à l'instant t_f. Le fait de fixer le temps ajoute aussi une équation à la fonction de tir, on a $\sum_{i=1}^{4} t_i = T$.

8.4 Split-Operator

Dans cette annexe, une approximation de l'opérateur d'évolution est présentée. Supposons un hamiltonien dépendant du temps de la forme $H(t) = H_0 + u(t)H_1$. La méthode du split-operator suppose ceci :

$$U(t+\Delta t, t) = e^{-\mathrm{i}\,H(t+\frac{\Delta t}{2})\Delta t} = e^{-\frac{\mathrm{i}\,H_0\Delta t}{2}} e^{-\mathrm{i}\,u(t+\frac{\Delta t}{2})H_1\Delta t} e^{-\frac{\mathrm{i}\,H_0\Delta t}{2}} + \mathcal{O}(\Delta t^3). \tag{8.17}$$

L'intérêt de cette méthode est que lors de la propagation, il est possible de prédiagonaliser H_0 et H_1 afin de les exponentier. Ainsi dans la boucle de propagation, il suffit seulement de faire des produits de matrices, il n'y a plus d'exponentiation à réaliser de matrice dans la boucle. Supposons que l'on ait $H_1 = V_1 D_1 V_1^\dagger$ et $H_0 = V_0 D_0 V_0^\dagger$, avec D_1 et D_0 deux matrices diagonales, alors on a :

$$U(t+\Delta t, t) = V_0 e^{-\frac{\mathrm{i}\,D_0\Delta t}{2}} V_0^\dagger V_1 e^{-\mathrm{i}\,D_1\Delta t} V_1^\dagger V_0 e^{-\frac{\mathrm{i}\,D_0\Delta t}{2}} V_0^\dagger \tag{8.18}$$

Voici un exemple de code évitant des calculs superflus utilisant l'équation ci-dessus.

```
%-------------------------------------------------------------------------%
[V0 D0]      = eig(H0);   %---- prédiagonalisation
[V1 D1]      = eig(H1);
eH0          = V0*exp(-0.5*1i*dt*D0)*V0';
A            = eH0*V1;    %---- précalcul des produits de matrices
B            = V1'*eH0;
%----%
psi          = psi0;      %---- initialisation de l'état du système
for i1 = 1:N-1            %---- boucle sur le temps
    psi      = B*psi;     %---- produit matrice-vecteur
    psi      = exp(-1i*dt*diag(D1)*...
               (u(i1+1)+u(i1))/2).*psi; %---- produit vecteur-vecteur
    psi      = A*psi;     %---- produit matrice-vecteur
end
%-------------------------------------------------------------------------%
```

Cette méthode peut être généralisée pour des hamiltoniens plus complexes tel que $H = H_0 + u_1 H_1 + u_2 H_2$, on peut vérifier avec Maple que l'approximation suivantes est également d'ordre de $\mathcal{O}(\Delta t^3)$:

$$U = e^{-\frac{\mathrm{i}\, H_0 \Delta t}{2}} e^{-\frac{\mathrm{i}\, u_1 H_1 \Delta t}{2}} e^{-\mathrm{i}\, u_2 H_2 \Delta t} e^{-\frac{\mathrm{i}\, u_1 H_1 \Delta t}{2}} e^{-\frac{\mathrm{i}\, H_0 \Delta t}{2}}, \tag{8.19}$$

ce qui numériquement sera efficace en prédiagonalisant H_0, H_1 et H_2.

8.5 Approximation de Galerkin

Dans cette partie, on rappelle comment lorsqu'un espace de Hilbert est infini, il est possible de se retreindre à un espace de dimension fini. Cette approximation est utilisée pour traiter le contrôle par champ laser de la dynamique rotationnelle moléculaire. Pour cela il faut introduire le projecteur P permettant de projeter un opérateur défini sur l'espace de Hilbert complet sur l'espace de Hilbert tronqué. On introduit également le projecteur suivant $Q = 1 - P$ qui lui permet de projeter le même opérateur sur l'espace de Hilbert complémentaire de l'espace tronqué. On peut alors décomposer l'état du système $|\psi\rangle$ comme suit :

$$|\psi\rangle = |\psi_P\rangle + |\psi_Q\rangle, \tag{8.20}$$

On peut l'imaginer sous forme vectorielle de la façon suivante :

$$|\psi\rangle = \left(\frac{\psi_P}{\psi_Q} \right), \tag{8.21}$$

L'hamiltonien du système H peut alors être décomposé de la façon suivante :

$$H = PHP + PHQ + QHP + QHQ \tag{8.22}$$

Cette décomposition est facile à visualiser sous forme matricielle :

$$H = \left(\begin{array}{c|c} H_{P,P} & H_{P,Q} \\ \hline H_{Q,P} & H_{Q,Q} \end{array} \right). \tag{8.23}$$

avec $H_{P,P} = PHP$, $H_{P,Q} = PHQ$, $H_{Q,P} = QHP$ et $H_{Q,Q} = QHQ$. La dynamique du système peut alors séparer se simplement en deux équations différentielles couplées :

$$\begin{cases} \mathrm{i}\,\dfrac{\partial}{\partial t}|\psi_P\rangle &= H_{P,P}|\psi_P\rangle + H_{P,Q}|\psi_Q\rangle \\ \mathrm{i}\,\dfrac{\partial}{\partial t}|\psi_Q\rangle &= H_{Q,Q}|\psi_Q\rangle + H_{Q,P}|\psi_P\rangle \end{cases} . \tag{8.24}$$

L'approximation de Galerkin consiste à négliger le terme $|\psi_Q\rangle$ dans la dynamique du système tronqué $|\psi_P\rangle$.

8.6 Projection des opérateurs $\cos\theta$ dans la base des harmoniques sphériques $\{|j,m\rangle\}$

On rappelle ici l'expression des éléments de matrice dans la base des harmoniques sphériques de principaux opérateurs utilisés dans le cadre de rotation moléculaire. Pour simplifier, on note les cosinus directeurs sous la forme :

$$\begin{cases} \cos\theta_x &= \sin\theta\sin\varphi \\ \cos\theta_y &= \sin\theta\cos\varphi \\ \cos\theta_z &= \cos\theta \end{cases} . \tag{8.25}$$

On pose :

$$a_{j,m} = \sqrt{\frac{(j-m+1)(j+m+1)}{(2j+1)(2j+3)}} \quad \text{et} \quad b_{j,m} = \frac{1}{2}\sqrt{\frac{(j+m+1)(j+m+2)}{(2j+1)(2j+3)}}. \tag{8.26}$$

L'expression des cosinus directeurs dans la base des harmoniques sphériques est :

$$\begin{cases} \cos\theta_x|j,m\rangle = & -b_{j,m}|j+1,m+1\rangle + b_{j,-m}|j+1,m-1\rangle \\ & +b_{j-1,-m-1}|j-1,m+1\rangle - b_{j-1,m-1}|j-1,m-1\rangle \\ \cos\theta_y|j,m\rangle = & i\,[+b_{j,m}|j+1,m+1\rangle + b_{j,-m}|j+1,m-1\rangle \\ & -b_{j-1,-m-1}|j-1,m+1\rangle - b_{j-1,m-1}|j-1,m-1\rangle] \\ \cos\theta_z|j,m\rangle & = a_{j,m}|j+1,m\rangle + a_{j-1,m}|j-1,m\rangle \end{cases} . \tag{8.27}$$

Remarque :numériquement l'indexation des opérateurs se fait à l'aide de $k = j(j+1)+m+1$. Les formules inverses sont : $j = \text{round}\sqrt{k-1}$. Ceci est vrai car on sait que $j^2 \leq k-1 \leq (j+1)^2$ car $-j \leq m \leq j$. La formule inverse pour retrouver m est simplement $m = k-1-j(j+1)$. L'expression

du carré des cosinus directeurs est alors :

$$\begin{cases} \cos^2\theta_x|j,m\rangle = & a_1|j+2,m+2\rangle - a_2|j+2,m\rangle + a_3|j+2,m-2\rangle - \\ & a_4|j,m+2\rangle + a_5|j,m\rangle - a_6|j,m-2\rangle + \\ & a_7|j-2,m+2\rangle - a_8|j-2,m\rangle + a_9|j-2,m-2\rangle \\ \cos^2\theta_y|j,m\rangle = & -a_1|j+2,m+2\rangle - a_2|j+2,m\rangle - a_3|j+2,m-2\rangle + \\ & a_4|j,m+2\rangle + a_5|j,m\rangle + a_6|j,m-2\rangle - \\ & a_7|j-2,m+2\rangle - a_8|j-2,m\rangle - a_9|j-2,m-2\rangle \\ \cos^2\theta_z|j,m\rangle = & a_j a_{j+1}|j+2,m\rangle + \left(a_j^2 + a_{j-1}^2\right)|j,m\rangle + a_{j-1}a_{j-2}|j-2,m\rangle \end{cases}, \tag{8.28}$$

en posant

$$\begin{cases} a_1 & = b_{j,m}b_{j+1,m+1} \\ a_2 & = b_{j,m}b_{j+1,-m-1} + b_{j,-m}b_{j+1,m-1} \\ a_3 & = b_{j,-m}b_{j+1,-m+1} \\ a_4 & = b_{j,m}b_{j,-m-2} + b_{j-1,-m-1}b_{j-1,m+1} \\ a_5 & = b_{j,m}^2 + b_{j,-m}^2 + b_{j-1,-m-1}^2 + b_{j-1,m-1}^2 \\ a_6 & = b_{j,-m}b_{j,m-2} + b_{j-1,m-1}b_{j-1,-m+1} \\ a_7 & = b_{j-1,-m-1}b_{j-2,-m-2} \\ a_8 & = b_{j-1,-m-1}b_{j-2,m} + b_{j-1,m-1}b_{j-2,-m} \\ a_9 & = b_{j-1,m-1}b_{j-2,m-2} \end{cases}. \tag{8.29}$$

On peut également exprimer le terme croisé $\cos\theta_x\cos\theta_y$:

$$\begin{aligned} \cos\theta_x\cos\theta_y &= \frac{1}{2}\left(\hat{\cos}\theta_x\hat{\cos}\theta_y + \hat{\cos}\theta_y\hat{\cos}\theta_x\right) \\ \cos\theta_x\cos\theta_y|j,m\rangle &= i\left[-a_1|j+2,m+2\rangle + a_3|j+2,m-2\rangle + a_4|j,m+2\rangle - \right. \\ & \left. a_6|j,m-2\rangle - a_7|j-2,m+2\rangle + a_9|j-2,m-2\rangle\right] \end{aligned} \tag{8.30}$$

Les carrés des opérateurs cosinus directeurs ne couplent pas les espaces symétrisés paires et impaires entre eux. Ces espaces sont définis comme :

$$|\varphi_{j,m}^{\pm}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}\left(|j,m\rangle \pm |j,-m\rangle\right). \tag{8.31}$$

On peut le vérifier en calculant le terme de couplage entre $|\varphi_{j,m}^{+}\rangle$ et $|\varphi_{j',m'}^{-}\rangle$ et en utiliser les relations

suivantes :

$$\begin{cases} a_1^{j,m} &= a_3^{j,-m} \\ a_4^{j,m} &= a_6^{j,-m} \\ a_7^{j,m} &= a_9^{j,-m} \\ a_2^{j,m} &= a_2^{j,-m} \\ a_5^{j,m} &= a_5^{j,-m} \\ a_8^{j,m} &= a_8^{j,-m} \end{cases} . \tag{8.32}$$

Il est important de remarquer que dans l'espace de Hilbert complet, les opérateurs $\cos\theta_x$ et $\cos\theta_y$ commutent. En revanche, dans une base de dimension finie (en projetant l'espace de Hilbert sur un sous-espace délimité par une valeur $j = j_m$), ils ne commutent plus. On trouve alors pour seul élément non-nul :

$$\langle j_m, m| \left[\cos\theta_x, \cos\theta_y\right] |j_m, m\rangle = \frac{-im}{2j_m + 1} \tag{8.33}$$

8.7 Relation de passage entre espace $\{j, m\}$ et espace symétrisé.

L'objectif de cette section est de permettre de diviser l'espace de Hilbert en un maximum de sous-espaces découplés afin d'alléger les calculs numériques. Les symboles $\pm$ signifient : $+$ paire et $-$ impaire. Exemple $\{+++\}$: {Espace paire,j paire, m paire}.

	Espace "+", $m \geq 0$													
(j, m)	(0,0)	(2,0)	(2,2)	(4,2)	(4,4)	(2,1)	(4,1)	(4,3)	(1,0)	(3,0)	(3,2)	(1,1)	(3,1)	(3,3)
k	1	2	3	4	5	1	2	3	1	2	3	1	2	3
	$+++$					$++-$			$+-+$			$+--$		

	Espace "$-$", $m > 0$									
(j, m)	(2,2)	(4,2)	(4,4)	(2,1)	(4,1)	(4,3)	(3,2)	(1,1)	(3,1)	(3,3)
k	1	2	3	1	2	3	1	1	2	3
	$-++$			$-+-$			$--+$	$---$		

Tab. 8.1: Organisation des indices (j, m) dans l'espace totalement symétrisé, c'est-à-dire l'espace symétrisé et en plus découpé selon la parité de j et m. Ce tableau sert de support pour vérifier que les formules de passage d'un espace à l'autre sont justes.

Passage de l'espace $|j, m\rangle$ à l'espace symétrisé :

$$\begin{cases} +++ & : \quad j' = \dfrac{j_p}{2} & ; \quad m' = \dfrac{m_p}{2} \\ ++- & : \quad j' = \dfrac{j_p}{2} - 1 & ; \quad m' = \dfrac{m_i - 1}{2} \\ +-+ & : \quad j' = \dfrac{j_i - 1}{2} & ; \quad m' = \dfrac{m_p}{2} \\ +-- & : \quad j' = \dfrac{j_i - 1}{2} & ; \quad m' = \dfrac{m_i - 1}{2} \\ -++ & : \quad j' = \dfrac{j_p}{2} - 1 & ; \quad m' = \dfrac{m_p}{2} - 1 \\ -+- & : \quad j' = \dfrac{j_p}{2} - 1 & ; \quad m' = \dfrac{m_i - 1}{2} \\ --+ & : \quad j' = \dfrac{j_i - 3}{2} & ; \quad m' = \dfrac{m_p}{2} - 1 \\ --- & : \quad j' = \dfrac{j_i - 1}{2} & ; \quad m' = \dfrac{m_i - 1}{2} \end{cases} . \tag{8.34}$$

L'indexation de l'espace symétrisé se fait alors avec l'indice : $k = \dfrac{1}{2} j' \left(j' + 1\right) + m' + 1$. Attention ces relations sont valables pour j_{max} paire.

Passage de l'espace symétrisé à l'espace $|j, m\rangle$:

$$\begin{cases} +++ & : \quad j_p = 2j' & ; \quad m_p = 2m' \\ ++- & : \quad j_p = 2\left(j' + 1\right) & ; \quad m_i = 2m' + 1 \\ +-+ & : \quad j_i = 2j' + 1 & ; \quad m_p = 2m' \\ +-- & : \quad j_i = 2j' + 1 & ; \quad m_i = 2m' + 1 \\ -++ & : \quad j_p = 2\left(j' + 1\right) & ; \quad m_p = 2\left(m' + 1\right) \\ -+- & : \quad j_p\left(j' + 1\right) & ; \quad m_i = 2\left(m' + 1\right) \\ --+ & : \quad j_i = 2j' + 1 & ; \quad m_p = 2\left(m' + 1\right) \\ --- & : \quad j_i = 2j' + 1 & ; \quad m_i = 2m' + 1 \end{cases} . \tag{8.35}$$

Remarque : Attention ici, on a les relations de passages pour diviser l'espace $\{j, m\}$ en huit sous-espace. Ces relations sont valables dans le cas où l'hamiltonien du système ne couple pas les espaces paires/impaires, ni les espaces j_p/j_i et ni les espaces m_p/m_i (Par exemple, les opérateurs $\cos\theta_i$ couplent les espaces j_p/j_i et m_p/m_i).

8.8 Projection des cosinus directeurs dans la base $\{|j,k,m\rangle\}$

Les notations de Zare [64] sont utilisées dans tout ce qui suit. Les conventions utilisées sont $\{X,Y,Z\}$ pour les composantes du repère lié au laboratoire et $\{x,y,z\}$ pour les composantes du repère lié à la molécule. Les 9 cosinus directeurs peuvent être exprimés en fonction des matrices de Wigner $D^j_{m,k}$:

$$\begin{cases} \cos\theta_{x.X} = & -\sin\varphi\sin\chi + \cos\theta\cos\varphi\cos\chi & = \frac{1}{2}\left[D^1_{1,1} - D^1_{1,-1} - D^1_{-1,1} + D^1_{-1,-1}\right] \\ \cos\theta_{x.Y} = & -\cos\varphi\cos\chi + \cos\theta\sin\varphi\cos\chi & = \frac{i}{2}\left[D^1_{1,1} - D^1_{1,-1} + D^1_{-1,1} - D^1_{-1,-1}\right] \\ \cos\theta_{x.Z} = & \sin\theta\cos\chi & = \frac{1}{\sqrt{2}}\left[D^1_{0,-1} - D^1_{0,1}\right] \\ \cos\theta_{y.X} = & -\sin\varphi\cos\chi - \cos\theta\cos\varphi\sin\chi & = \frac{i}{2}\left[-D^1_{1,1} - D^1_{1,-1} + D^1_{-1,1} + D^1_{-1,-1}\right] \\ \cos\theta_{y.Y} = & \cos\varphi\cos\chi - \cos\theta\sin\varphi\sin\chi & = \frac{1}{2}\left[D^1_{1,1} + D^1_{1,-1} + D^1_{-1,1} + D^1_{-1,-1}\right] \\ \cos\theta_{y.Z} = & \sin\theta\sin\chi & = \frac{i}{\sqrt{2}}\left[D^1_{0,-1} + D^1_{0,1}\right] \\ \cos\theta_{z.X} = & \sin\theta\cos\varphi & = \frac{1}{\sqrt{2}}\left[D^1_{-1,0} - D^1_{1,0}\right] \\ \cos\theta_{z.Y} = & \sin\theta\sin\varphi & = -\frac{i}{2}\left[D^1_{1,0} + D^1_{-1,0}\right] \\ \cos\theta_{z.Z} = & \cos\theta & = D^1_{0,0} \end{cases} . \tag{8.36}$$

L'expression des matrices de Wigner en fonction des angles d'Euler est :

$$D^j_{m,k} = \exp(-im\varphi)d^j_{m,k}(\theta)\exp(-ik\chi), \tag{8.37}$$

avec $d^j_{m,k} = \langle j,m|\exp(-i\theta j_Y)|j,k\rangle$. Ensuite, afin d'exprimer les cosinus directeur dans la base $\{|j,k,m\rangle\}$, on doit utiliser les relations suivantes permettant d'exprimer les matrices de Wigner dans la base mentionnée :

$$|j,k,m\rangle = \sqrt{\frac{2j+1}{4\pi}}D^j_{m,k}(\varphi,\theta,\chi)^* = (-1)^{m-k}\sqrt{\frac{2j+1}{4\pi}}D^j_{-m,-k}(\varphi,\theta,\chi)$$

$$\int D^{j_3}_{m_3,k_3}D^{j_2}_{m_2,k_2}D^{j_1}_{m_1,k_1} = 8\pi^2\begin{pmatrix} j_1 & j_2 & j_3 \\ m_1 & m_2 & m_3 \end{pmatrix}\begin{pmatrix} j_1 & j_2 & j_3 \\ k_1 & k_2 & k_3 \end{pmatrix}.$$

L'expression des symboles 3-j en fonction des coefficients de Clebsh-Gordan est :

$$\begin{pmatrix} j_1 & j_2 & j_3 \\ m_1 & m_2 & m_3 \end{pmatrix} = (-1)^{j_1-j_2-m_3}(2j_3+1)^{-\frac{1}{2}}\langle j_1,m_1;j_2,m_2|j_3,-m_3\rangle .$$

Le symbole respecte les règles de sélection : $\sum_i m_i = 0$ et $|j_1 - j_2| \leq j_3 \leq j_1 + j_2$. La formule de Racah permet de déterminer l'expression des coefficients de Clebsh-Gordan :

$$\begin{aligned}
\langle j_1, m_1; j_2, m_2 | j_3, m_3 \rangle \quad = \quad & \left[\frac{(2j_3+1)(s-2j_3)!(s-2j_2)!(s-2j_1)!}{(s+1)!} \right. \\
& \left. \times (j_1+m_1)!(j_1-m_1)!(j_2+m_2)!(j_2-m_2)!(j_3+m_3)!(j_3-m_3)! \right]^{\frac{1}{2}} \\
& \times \sum_\nu (-1)^\nu / \left[\nu!(j_1+j_2-j_3-\nu)!(j_1-m_1-\nu)!(j_2+m_2-\nu)! \right. \\
& \left. \times (j_3-j_2+m_1+\nu)!(j_3-j_1-m_2+\nu)! \right].
\end{aligned}$$

Dans la formule ci-dessus, la somme sur ν se fait pour toutes les valeurs de ν tel que chaque factorielle soit fonction d'un entier strictement positif.

Il est alors possible de trouver un élément de la matrice $D^j_{m,k}$:

$$\boxed{\langle j_3, k_3, m_3 | \, D^{j_2}_{m_2,k2} \, | j_1, k_1, m_1 \rangle = (-1)^{m_1-k_1} \sqrt{(2j_3+1)(2j_1+1)} \begin{pmatrix} j_1 & j_2 & j_3 \\ -m_1 & m_2 & m_3 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} j_1 & j_2 & j_3 \\ -k_1 & k_2 & k_3 \end{pmatrix}}$$

Ensuite pour calculer le carré des cosinus directeurs, la formule suivante est nécessaire :

$$D^{j_1}_{m_1,k_1} D^{j_2}_{m_2,k_2} = \sum_{j_3} (2j_3+1) \begin{pmatrix} j_1 & j_2 & j_3 \\ m_1 & m_2 & m_3 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} j_1 & j_2 & j_3 \\ k_1 & k_2 & k_3 \end{pmatrix} D^{j_3}_{m_3,k_3}. \tag{8.38}$$

Dans cette formule, la somme sur j_3 est faite sur toutes les valeurs admises par les symboles 3-j, c'est-à-dire pour $|j_1 - j_2| \leq j_3 \leq j_1 + j_2$. Prenons l'exemple du calcul de $\cos^2 \theta_{z.Z}$:

$$\cos^2 \theta_{z.Z} = \left(D^1_{0,0} \right)^2 = \frac{1}{3} D^0_{0,0} + \frac{2}{3} D^2_{0,0}.$$

Numériquement, il est aisé d'implémenter la formule (8.38). Cela permet de décomposer les opérateurs $\cos^n \theta_{i,J}$ en fonction des matrices de Wigner. A partir de la formule (8.36), on peut évaluer l'expression des matrices de Wigner dans la base $|J, K, M\rangle$. Cependant il faut remarquer que dans ces formules, il y a de nombreux produits factoriels, il convient alors numériquement de décomposer les formules de façon efficace pour éviter d'avoir à diviser des grands nombres par des grands nombres, cela diminuerait la précision du calcul.

8.9 Expression des opérateurs de moment angulaire dans la base de Wigner

Afin d'éviter toute confusion, il est utile d'écrire les expressions des composantes du moment cinétique dans les repères du laboratoire et de la moléculaire :

$$\begin{cases} j^2|j,k,m\rangle = & j(j+1)|j,k,m\rangle \\ j_X|j,k,m\rangle = & \frac{1}{2}\sqrt{j(j+1)-m(m+1)}|j,k,m+1\rangle + \frac{1}{2}\sqrt{j(j+1)-m(m-1)}|j,k,m-1\rangle \\ j_Y|j,k,m\rangle = & -\frac{i}{2}\sqrt{j(j+1)-m(m+1)}|j,k,m+1\rangle + \frac{i}{2}\sqrt{j(j+1)-m(m-1)}|j,k,m-1\rangle \\ j_Z|j,k,m\rangle = & m|j,k,m\rangle \\ j_x|j,k,m\rangle = & \frac{1}{2}\sqrt{j(j+1)-k(k+1)}|j,k+1,m\rangle + \frac{1}{2}\sqrt{j(j+1)-k(k-1)}|j,k-1,m\rangle \\ j_y|j,k,m\rangle = & \frac{i}{2}\sqrt{j(j+1)-k(k+1)}|j,k+1,m\rangle - \frac{i}{2}\sqrt{j(j+1)-k(k-1)}|j,k-1,m\rangle \\ j_z|j,k,m\rangle = & k|j,k,m\rangle \end{cases} \tag{8.39}$$

8.10 Expression de quelques matrices $D^1_{m,k}$

$\underline{\langle j',k',m'|\, D^1_{0,0}\, |j,k,m\rangle}$

$$\begin{aligned} \langle j-1,k,m|\, D^1_{0,0}\, |j,k,m\rangle &= +\sqrt{\frac{(j-m)(j+m)(j-k)(j+k)}{(2j-1)(2j+1)j^2}} \\ \langle j,k,m|\, D^1_{0,0}\, |j,k,m\rangle &= +\frac{mk}{j(j+1)} \\ \langle j+1,k,m|\, D^1_{0,0}\, |j,k,m\rangle &= +\sqrt{\frac{(j-m+1)(j+m+1)(j-k+1)(j+k+1)}{(2j+1)(2j+3)(j+1)^2}} \end{aligned}$$

$\underline{\langle j',k',m'|\, D^1_{1,0}\, |j,k,m\rangle}$

$$\begin{aligned} \langle j-1,k,m-1|\, D^1_{1,0}\, |j,k,m\rangle &= +\sqrt{\frac{(j+m-1)(j+m)(j-k)(j+k)}{2(2j-1)(2j+1)j^2}} \\ \langle j,k,m-1|\, D^1_{1,0}\, |j,k,m\rangle &= -\frac{k}{j(j+1)}\sqrt{\frac{(j-m+1)(j+m)}{2}} \\ \langle j+1,k,m-1|\, D^1_{1,0}\, |j,k,m\rangle &= -\sqrt{\frac{(j-m+1)(j-m+2)(j-k+1)(j+k+1)}{2(2j+1)(2j+3)(j+1)^2}} \end{aligned}$$

$\underline{\left\langle j', k', m' \right| D^1_{-1,0} \left| j, k, m \right\rangle}$

$$\begin{aligned}
\langle j-1, k, m+1 | D^1_{-1,0} | j, k, m \rangle &= +\frac{1}{j}\sqrt{\frac{(j-m-1)(j-m)(j-k)(j+k)}{2(2j-1)(2j+1)}} \\
\langle j, k, m+1 | D^1_{-1,0} | j, k, m \rangle &= +\frac{k}{j(j+1)}\sqrt{\frac{(j+m+1)(j-m)}{2}} \\
\langle j+1, k, m+1 | D^1_{-1,0} | j, k, m \rangle &= -\frac{1}{j+1}\sqrt{\frac{(j+m+1)(j+m+2)(j-k+1)(j+k+1)}{2(2j+1)(2j+3)}}
\end{aligned}$$

$\underline{\left\langle j', k', m' \right| D^1_{0,1} \left| j, k, m \right\rangle}$

$$\begin{aligned}
\langle j-1, k-1, m | D^1_{0,1} | j, k, m \rangle &= +\frac{1}{j}\sqrt{\frac{(j-m)(j+m)(j+k-1)(j+k)}{2(2j-1)(2j+1)}} \\
\langle j, k-1, m | D^1_{0,1} | j, k, m \rangle &= -\frac{m}{j(j+1)}\sqrt{\frac{(j-k+1)(j+k)}{2}} \\
\langle j+1, k-1, m | D^1_{0,1} | j, k, m \rangle &= -\frac{1}{j+1}\sqrt{\frac{(j+m+1)(j-m+1)(j-k+1)(j-k+2)}{2(2j+1)(2j+3)}}
\end{aligned}$$

$\underline{\left\langle j', k', m' \right| D^1_{0,-1} \left| j, k, m \right\rangle}$

$$\begin{aligned}
\langle j-1, k+1, m | D^1_{0,-1} | j, k, m \rangle &= +\frac{1}{j}\sqrt{\frac{(j-m)(j+m)(j-k-1)(j-k)}{2(2j-1)(2j+1)}} \\
\langle j, k+1, m | D^1_{0,-1} | j, k, m \rangle &= +\frac{m}{j(j+1)}\sqrt{\frac{(j-k)(j+k+1)}{2}} \\
\langle j+1, k+1, m | D^1_{0,-1} | j, k, m \rangle &= -\frac{1}{j+1}\sqrt{\frac{(j+m+1)(j-m+1)(j+k+2)(j+k+1)}{2(2j+1)(2j+3)}}
\end{aligned}$$

$\underline{\left\langle j', k', m' \right| D^1_{1,1} \left| j, k, m \right\rangle}$

$$\begin{aligned}
\langle j-1, k-1, m-1 | D^1_{1,1} | j, k, m \rangle &= +\frac{1}{2j}\sqrt{\frac{(j+m+1)(j+m-1)(j+k)(j+k+1)}{(2j-1)(2j+1)}} \\
\langle j, k-1, m-1 | D^1_{1,1} | j, k, m \rangle &= +\frac{1}{2j(j+1)}\sqrt{(j-m+1)(j+m)(j-k+1)(j+k)} \\
\langle j+1, k-1, m-1 | D^1_{1,1} | j, k, m \rangle &= +\frac{1}{2(j+1)}\sqrt{\frac{(j-m+1)(j-m+2)(j-k+1)(j-k+2)}{(2j+1)(2j+3)}}
\end{aligned}$$

$\underline{\langle j', k', m' | D^1_{1,-1} | j, k, m \rangle}$

$$\begin{aligned}
\langle j-1, k+1, m-1 | D^1_{1,-1} | j, k, m \rangle &= +\frac{1}{2j}\sqrt{\frac{(j+m)(j+m-1)(j-k)(j-k-1)}{(2j-1)(2j+1)}} \\
\langle j, k+1, m-1 | D^1_{1,-1} | j, k, m \rangle &= -\frac{1}{2j(j+1)}\sqrt{(j-m+1)(j+m)(j+k+1)(j-k)} \\
\langle j+1, k+1, m-1 | D^1_{1,-1} | j, k, m \rangle &= +\frac{1}{2(j+1)}\sqrt{\frac{(j-m+1)(j-m+2)(j+k+1)(j+k+2)}{(2j+1)(2j+3)}}
\end{aligned}$$

$\underline{\langle j', k', m' | D^1_{-1,1} | j, k, m \rangle}$

$$\begin{aligned}
\langle j-1, k-1, m+1 | D^1_{-1,1} | j, k, m \rangle &= +\frac{1}{2j}\sqrt{\frac{(j-m)(j-m-1)(j+k)(j+k-1)}{(2j-1)(2j+1)}} \\
\langle j, k-1, m+1 | D^1_{-1,1} | j, k, m \rangle &= -\frac{1}{2j(j+1)}\sqrt{(j-m-1)(j-m)(j+k-1)(j+k)} \\
\langle j+1, k-1, m+1 | D^1_{-1,1} | j, k, m \rangle &= +\frac{1}{2(j+1)}\sqrt{\frac{(j+m+1)(j+m+2)(j-k+1)(j-k+2)}{(2j+1)(2j+3)}}
\end{aligned}$$

$\underline{\langle j', k', m' | D^1_{-1,-1} | j, k, m \rangle}$

$$\begin{aligned}
\langle j-1, k+1, m+1 | D^1_{-1,-1} | j, k, m \rangle &= +\frac{1}{2j}\sqrt{\frac{(j-m-1)(j-m)(j-k-1)(j-k)}{(2j-1)(2j+1)}} \\
\langle j, k+1, m+1 | D^1_{-1,-1} | j, k, m \rangle &= +\frac{1}{2j(j+1)}\sqrt{(j+m+1)(j-m)(j+k+1)(j-k)} \\
\langle j+1, k+1, m+1 | D^1_{-1,-1} | j, k, m \rangle &= +\frac{1}{2(j+1)}\sqrt{\frac{(j+m+1)(j+m+2)(j+k+1)(j+k+2)}{(2j+1)(2j+3)}}
\end{aligned}$$

8.11 Expression des carrés des cosinus directeurs.

A l'aide de l'expression décrivant le produit de matrices de Wigner, on peut écrire l'expression des carrés des cosinus directeurs :

$$\left\{\begin{array}{ll}
\cos^2\theta_{x.X} & = \frac{1}{4}\left(\frac{4}{3}D^0_{0,0}+\frac{2}{3}D^2_{0,0}-\sqrt{\frac{2}{3}}\left(D^2_{-2,0}+D^2_{2,0}+D^2_{0,-2}+D^2_{0,2}\right)+D^2_{-2,-2}+D^2_{-2,2}+D^2_{2,-2}+D^2_{2,2}\right)\\
\cos^2\theta_{x.Y} & = -\frac{1}{4}\left(-\frac{4}{3}D^0_{0,0}+\frac{2}{3}D^2_{0,0}-\sqrt{\frac{2}{3}}\left(D^2_{-2,0}-D^2_{2,0}-D^2_{0,-2}+D^2_{0,2}\right)+D^2_{-2,-2}+D^2_{-2,2}+D^2_{2,-2}+D^2_{2,2}\right)\\
\cos^2\theta_{x.Z} & = \frac{1}{3}\left(D^0_{0,0}-D^2_{0,0}\right)+\frac{1}{\sqrt{6}}\left(D^2_{0,-2}+D^2_{0,2}\right)\\
\cos^2\theta_{y.X} & = \frac{1}{4}\left(\frac{4}{3}D^0_{0,0}+\frac{2}{3}D^2_{0,0}-\sqrt{\frac{2}{3}}\left(-D^2_{-2,0}-D^2_{2,0}+D^2_{0,-2}+D^2_{0,2}\right)-D^2_{-2,-2}-D^2_{-2,2}-D^2_{2,-2}-D^2_{2,2}\right)\\
\cos^2\theta_{y.Y} & = \frac{1}{4}\left(\frac{4}{3}D^0_{0,0}+\frac{2}{3}D^2_{0,0}+\sqrt{\frac{2}{3}}\left(D^2_{-2,0}+D^2_{2,0}+D^2_{0,-2}+D^2_{0,2}\right)+D^2_{-2,-2}+D^2_{-2,2}+D^2_{2,-2}+D^2_{2,2}\right)\\
\cos^2\theta_{y.Z} & = \frac{1}{3}\left(D^0_{0,0}-D^2_{0,0}\right)-\frac{1}{\sqrt{6}}\left(D^2_{0,-2}+D^2_{0,2}\right)\\
\cos^2\theta_{z.X} & = \frac{1}{3}\left(D^0_{0,0}-D^2_{0,0}\right)+\frac{1}{\sqrt{6}}\left(D^2_{-2,0}+D^2_{2,0}\right)\\
\cos^2\theta_{z.Y} & = \frac{1}{3}\left(D^0_{0,0}-D^2_{0,0}\right)-\frac{1}{\sqrt{6}}\left(D^2_{-2,0}+D^2_{2,0}\right)\\
\cos^2\theta_{z.Z} & = \frac{1}{3}D^0_{0,0}+\frac{2}{3}D^2_{0,0}
\end{array}\right. .$$

Bibliographie

[1] Arthur E. Bryson and Ho Yu-Chi. *Applied Optimal Control : Optimization, Estimation, and Control*. Taylor & Francis Inc, revised edition, September 1988.

[2] Donald E. Kirk. *Optimal Control Theory : An Introduction*. Dover Publications, April 2004.

[3] Bernard Bonnard, Ludovic Faubourg, and Emmanuel Trélat. *Mécanique céleste et contrôle des véhicules spatiaux*. Springer-Verlag Berlin and Heidelberg GmbH & Co. K, September 2005.

[4] Bernard Bonnard and Monique Chyba. *Singular Trajectories and their Role in Control Theory*. Springer, 1 edition, July 2003.

[5] Ugo Boscain and Benedetto Piccoli. *Optimal Syntheses for Control Systems on 2-D Manifolds*. Springer, 1 edition, January 2004.

[6] B Bonnard, JB Caillau, and E Trelat. Second order optimality conditions in the smooth case and applications in optimal control. *ESAIM-Control Optimisation and Calculus of Variations*, 13(2) :207–236, June 2007.

[7] Moshe Shapiro and P. Brumer. *Principles of the Quantum Control of Molecular Processes*. John Wiley & Sons Ltd, illustrated edition edition, April 2003.

[8] Stephen V. Rice and Muyu Zhao. *Optical Control of Molecular Dynamics*. John Wiley & Sons Inc, March 2000.

[9] R. Kosloff, S.A. Rice, P. Gaspard, S. Tersigni, and D.J. Tannor. Wavepacket dancing : Achieving chemical selectivity by shaping light pulses. *Chemical Physics*, 139(1) :201–220, December 1989.

[10] Richard S. Judson and Herschel Rabitz. Teaching lasers to control molecules. *Physical Review Letters*, 68(10) :1500, March 1992.

[11] T Seideman and E Hamilton. Nonadiabatic alignment by intense pulses. concepts, theory, and directions. *Advances in Atomic Molecular and Optical Physics*, 52 :289–329, 2005.

[12] Bretislav Friedrich and Dudley Herschbach. Alignment and trapping of molecules in intense laser fields. *Physical Review Letters*, 74(23) :4623, June 1995.

[13] H Jirari and W Potz. Quantum optimal control theory and dynamic coupling in the spin-boson model. *Physical Review A*, 74(2), August 2006.

[14] N Khaneja, R Brockett, and SJ Glaser. Time optimal control in spin systems. *Physical Review A*, 63(3), March 2001.

[15] A. Micheli, D. Jaksch, J. I. Cirac, and P. Zoller. Many-particle entanglement in two-component Bose-Einstein condensates. *Physical Review A*, 67(1) :013607, January 2003.

[16] K Beauchard, JM Coron, and P Rouchon. Controllability issues for Continuous-Spectrum systems and ensemble controllability of bloch equations. *Communications in Mathematical Physics*, 296(2) :525–557, June 2010.

[17] M Mirrahimi and P Rouchon. Controllability of quantum harmonic oscillators. *IEEE Transactions on Automatic Control*, 49(5) :745–747, May 2004.

[18] Claudio Altafini. Coherent control of open quantum dynamical systems. *Physical Review A*, 70(6) :062321, December 2004.

[19] D. Sugny, C. Kontz, and H. R. Jauslin. Time-optimal control of a two-level dissipative quantum system. *Physical Review A*, 76(2) :023419, 2007.

[20] William H. Press, Saul A. Teukolsky, William T. Vetterling, and Brian P. Flannery. *Numerical Recipes 3rd Edition : The Art of Scientific Computing*. Cambridge University Press, 3 edition, September 2007.

[21] A Rothman, TS Ho, and H Rabitz. Observable-preserving control of quantum dynamics over a family of related systems. *Physical Review A*, 72(2), August 2005.

[22] A Rothman, TS Ho, and H Rabitz. Exploring the level sets of quantum control landscapes. *Physical Review A*, 73(5), May 2006.

[23] C Brif, R Chakrabarti, and H Rabitz. Control of quantum phenomena : past, present and future. *New Journal of Physics*, 12, July 2010.

[24] J Werschnik and EKU Gross. Quantum optimal control theory. *Journal of Physics B-Atomic Molecular and Optical Physics*, 40(18) :R175–R211, September 2007.

[25] M. Lapert, R. Tehini, G. Turinici, and D. Sugny. Monotonically convergent optimal control theory of quantum systems under a nonlinear interaction with the control field. *Physical Review A*, 78(2) :023408, 2008.

[26] Anthony P. Peirce, Mohammed A. Dahleh, and Herschel Rabitz. Optimal control of quantum-mechanical systems : Existence, numerical approximation, and applications. *Physical Review A*, 37(12) :4950, June 1988.

[27] Wusheng Zhu, Jair Botina, and Herschel Rabitz. Rapidly convergent iteration methods for quantum optimal control of population. *The Journal of Chemical Physics*, 108(5) :1953, 1998.

[28] Yukiyoshi Ohtsuki, Wusheng Zhu, and Herschel Rabitz. Monotonically convergent algorithm for quantum optimal control with dissipation. *The Journal of Chemical Physics*, 110(20) :9825, 1999.

[29] J Salomon and G Turinici. On the relationship between the local tracking procedures and monotonic schemes in quantum optimal control. *The Journal of Chemical Physics*, 124(7), February 2006.

[30] Yvon Maday and Gabriel Turinici. New formulations of monotonically convergent quantum control algorithms. *The Journal of Chemical Physics*, 118(18) :8191, 2003.

[31] JP Palao and R Kosloff. Optimal control theory for unitary transformations. *Physical Review A*, 68(6), December 2003.

[32] Caroline Gollub, Markus Kowalewski, and Regina de Vivie-Riedle. Monotonic convergent optimal control theory with strict limitations on the spectrum of optimized laser fields. *Physical Review Letters*, 101(7) :073002, 2008.

[33] M. Lapert, R. Tehini, G. Turinici, and D. Sugny. Monotonically convergent optimal control theory of quantum systems with spectral constraints on the control field. *Physical Review A*, 79(6) :063411, June 2009.

[34] Yukiyoshi Ohtsuki and Kazuyuki Nakagami. Monotonically convergent algorithms for solving quantum optimal control problems of a dynamical system nonlinearly interacting with a control. *Physical Review A*, 77(3) :033414, March 2008.

[35] SE Sklarz and DJ Tannor. Loading a Bose-Einstein condensate onto an optical lattice : An application of optimal control theory to the nonlinear schrodinger equation. *Physical Review A*, 66(5), November 2002.

[36] N Khaneja, T Reiss, C Kehlet, T Schulte-Herbruggen, and SJ Glaser. Optimal control of coupled spin dynamics : design of NMR pulse sequences by gradient ascent algorithms. *Journal of Magnetic Resonance*, 172(2) :296–305, February 2005.

[37] David Tannor. *Introduction to Quantum Mechanics : A Time-Dependent Perspective*. University Science Books,U.S., illustrated edition edition, January 2007.

[38] P. de Fouquieres, S. G Schirmer, S. J Glaser, and Ilya Kuprov. Second order gradient ascent pulse engineering. *Arxiv :1102.4096*, February 2011.

[39] Thomas E. Skinner, Kyryl Kobzar, Burkhard Luy, M. Robin Bendall, Wolfgang Bermel, Navin Khaneja, and Steffen J. Glaser. Optimal control design of constant amplitude phase-modulated

pulses : Application to calibration-free broadband excitation. *Journal of Magnetic Resonance*, 179(2) :241–249, April 2006.

[40] S. Machnes, U. Sander, S. J Glaser, P. de Fouquieres, A. Gruslys, S. Schirmer, and T. Schulte-Herbrueggen. Comparing, optimising and benchmarking quantum control algorithms in a unifying programming framework. *Arxiv :1011.4874*, November 2010.

[41] Malcolm H. Levitt. *Spin Dynamics : Basics of Nuclear Magnetic Resonance*. Wiley-Blackwell (an imprint of John Wiley & Sons Ltd), 2nd revised edition edition, March 2008.

[42] Richard R. Ernst, Geoffrey Bodenhausen, and Alexander Wokaun. *Principles of Nuclear Magnetic Resonance in One and Two Dimensions*. Clarendon Press, reprint edition, May 1990.

[43] Bruno Kastler, Daniel Vetter, Zoltayn Patay, and Philippe Germain. *Comprendre l'IRM : Manuel d'auto-apprentissage*. Masson, 6e édition edition, November 2006.

[44] Girjesh Govil and K.V.R. Chary. *NMR in Biological Systems : From Molecules to Human*. Springer-Verlag New York Inc., illustrated edition edition, April 2008.

[45] Timo O. Reiss, Navin Khaneja, and Steffen J. Glaser. Time-Optimal Coherence-Order-Selective transfer of In-Phase coherence in heteronuclear IS spin systems. *Journal of Magnetic Resonance*, 154(2) :192–195, February 2002.

[46] Navin Khaneja, Steffen J. Glaser, and Roger Brockett. Sub-Riemannian geometry and time optimal control of three spin systems : Quantum gates and coherence transfer. *Physical Review A*, 65(3) :032301, January 2002.

[47] G M Bydder, J V Hajnal, and I R Young. MRI : use of the inversion recovery pulse sequence. *Clinical Radiology*, 53(3) :159–176, March 1998. PMID : 9528866.

[48] E. L. Hahn. Spin echoes. *Physical Review*, 80(4) :580, November 1950.

[49] P. Broekaert and J. Jeener. Suppression of radiation damping in NMR in liquids by active electronic feedback. *Journal of Magnetic Resonance, Series A*, 113(1) :60–64, March 1995.

[50] Hirofumi Sakai, C. P. Safvan, Jakob Juul Larsen, Karen Marie Hilligs\oe, Kasper Hald, and Henrik Stapelfeldt. Controlling the alignment of neutral molecules by a strong laser field. *The Journal of Chemical Physics*, 110(21) :10235, 1999.

[51] Niels E. Henriksen. Molecular alignment and orientation in short pulse laser fields. *Chemical Physics Letters*, 312(2-4) :196–202, October 1999.

[52] S. Thomas, S. Guérin, and H. R. Jauslin. State-selective chirped adiabatic passage on dynamically laser-aligned molecules. *Physical Review A*, 71(1) :013402, January 2005.

[53] R. Torres, R. de Nalda, and J. P. Marangos. Dynamics of laser-induced molecular alignment in the impulsive and adiabatic regimes : A direct comparison. *Physical Review A*, 72(2) :023420, 2005.

[54] F. Rosca-Pruna and M. J. J. Vrakking. Experimental observation of revival structures in picosecond Laser-Induced alignment of I$_2$. *Physical Review Letters*, 87(15) :153902, 2001.

[55] Jakob Juul Larsen, Nils Jakob M\orkbak, Johannes Olesen, Nis Bjerre, Mette Machholm, S\oren Rud Keiding, and Henrik Stapelfeldt. Femtosecond photodissociation dynamics of I_2 studied by ion imaging. *The Journal of Chemical Physics*, 109(20) :8857, 1998.

[56] Wousik Kim and Peter M. Felker. Spectroscopy of pendular states in optical-field-aligned species. *The Journal of Chemical Physics*, 104(3) :1147, 1996.

[57] V. Renard, M. Renard, A. Rouzée, S. Guérin, H. R. Jauslin, B. Lavorel, and O. Faucher. Nonintrusive monitoring and quantitative analysis of strong laser-field-induced impulsive alignment. *Physical Review A*, 70(3) :033420, 2004.

[58] Henrik Stapelfeldt and Tamar Seideman. Colloquium : Aligning molecules with strong laser pulses. *Reviews of Modern Physics*, 75(2) :543, April 2003.

[59] A. Matos-Abiague and J. Berakdar. Sustainable orientation of polar molecules induced by half-cycle pulses. *Physical Review A*, 68(6) :063411, December 2003.

[60] D. Sugny, A. Keller, O. Atabek, D. Daems, S. Guérin, and H. R. Jauslin. Time-dependent unitary perturbation theory for intense laser-driven molecular orientation. *Physical Review A*, 69(4) :043407, April 2004.

[61] R. Tehini and D. Sugny. Field-free molecular orientation by nonresonant and quasiresonant two-color laser pulses. *Physical Review A*, 77(2) :023407, February 2008.

[62] S. De, I. Znakovskaya, D. Ray, F. Anis, Nora G. Johnson, I. A. Bocharova, M. Magrakvelidze, B. D. Esry, C. L. Cocke, I. V. Litvinyuk, and M. F. Kling. Field-Free orientation of CO molecules by femtosecond Two-Color laser fields. *Physical Review Letters*, 103(15) :153002, October 2009.

[63] Keita Oda, Masafumi Hita, Shinichirou Minemoto, and Hirofumi Sakai. All-Optical molecular orientation. *Physical Review Letters*, 104(21) :213901, May 2010.

[64] Richard N. Zare. *Angular Momentum : Understanding Spatial Aspects in Chemistry and Physics.* John Wiley & Sons Inc, August 1988.

[65] J Werschnik and EKU Gross. Tailoring laser pulses with spectral and fluence constraints using optimal control theory. *Journal of Optics B-Quantum and Semiclassical Optics*, 7(10) :S300–S312, October 2005.

[66] E. Hertz, A. Rouzée, S. Guérin, B. Lavorel, and O. Faucher. Optimization of field-free molecular alignment by phase-shaped laser pulses. *Physical Review A*, 75(3) :031403, March 2007.

[67] O M Shir, V Beltrani, Th Bäck, H Rabitz, and M J J Vrakking. On the diversity of multiple optimal controls for quantum systems. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 41(7) :074021, April 2008.

[68] D. Sugny, A. Keller, O. Atabek, D. Daems, C. M. Dion, S. Guérin, and H. R. Jauslin. Reaching optimally oriented molecular states by laser kicks. *Physical Review A*, 69(3) :033402, March 2004.

[69] Julien Salomon, Claude M. Dion, and Gabriel Turinici. Optimal molecular alignment and orientation through rotational ladder climbing. *The Journal of Chemical Physics*, 123(14) :144310, 2005.

[70] D. Sugny, A. Keller, O. Atabek, D. Daems, C. M. Dion, S. Guérin, and H. R. Jauslin. Control of mixed-state quantum systems by a train of short pulses. *Physical Review A*, 72(3) :032704, 2005.

[71] Y Khodorkovsky, K Kitano, H Hasegawa, Y Ohshima, and IS Averbukh. Controlling the sense of molecular rotation : Classical versus quantum analysis. *Physical Review A*, 83(2), February 2011.

[72] E Gershnabel and IS Averbukh. Controlling molecular scattering by laser-induced field-free alignment. *Physical Review A*, 82(3), September 2010.

[73] S Fleischer, Y Khodorkovsky, Y Prior, and IS Averbukh. Controlling the sense of molecular rotation. *New Journal of Physics*, 11, October 2009.

[74] J Floss, E Gershnabel, and IS Averbukh. Motion of spinning molecules in inhomogeneous fields. *Physical Review A*, 83(2), February 2011.

[75] M. Lapert, E. Hertz, S. Guérin, and D. Sugny. Field-free permanent molecular planar alignment. *Physical Review A*, 80(5) :051403, November 2009.

[76] M. Lapert, S. Guérin, and D. Sugny. Field-free quantum cogwheel by shaping of rotational wave packets. *Physical Review A*, 83(1) :013403, January 2011.

[77] Joanna Karczmarek, James Wright, Paul Corkum, and Misha Ivanov. Optical centrifuge for molecules. *Physical Review Letters*, 82(17) :3420, April 1999.

[78] D. M. Villeneuve, S. A. Aseyev, P. Dietrich, M. Spanner, M. Yu. Ivanov, and P. B. Corkum. Forced molecular rotation in an optical centrifuge. *Physical Review Letters*, 85(3) :542, July 2000.

[79] N. V. Vitanov and B. Girard. Adiabatic excitation of rotational ladder by chirped laser pulses. *Physical Review A*, 69(3) :033409, March 2004.

[80] Kenta Kitano, Hirokazu Hasegawa, and Yasuhiro Ohshima. Ultrafast angular momentum orientation by linearly polarized laser fields. *Physical Review Letters*, 103(22) :223002, November 2009.

[81] Luca Vattuone, Andrea Gerbi, Mario Rocca, Ugo Valbusa, Fernando Pirani, Franco Vecchiocattivi, and David Cappelletti. Stereodynamic effects in the adsorption of ethylene onto a metal surface. *Angewandte Chemie International Edition*, 43(39) :5200–5203, October 2004.

[82] R Gati and M K Oberthaler. A bosonic josephson junction. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 40(10) :R61–R89, May 2007.

[83] B. D. Josephson. Possible new effects in superconductive tunnelling. *Physics Letters*, 1(7) :251–253, July 1962.

[84] P. W. Anderson and J. M. Rowell. Probable observation of the josephson superconducting tunneling effect. *Physical Review Letters*, 10(6) :230, March 1963.

[85] R. C. Jaklevic, John Lambe, A. H. Silver, and J. E. Mercereau. Quantum interference effects in josephson tunneling. *Physical Review Letters*, 12(7) :159, February 1964.

[86] Juha Javanainen. Oscillatory exchange of atoms between traps containing bose condensates. *Physical Review Letters*, 57(25) :3164, December 1986.

[87] G. J. Milburn, J. Corney, E. M. Wright, and D. F. Walls. Quantum dynamics of an atomic Bose-Einstein condensate in a double-well potential. *Physical Review A*, 55(6) :4318, June 1997.

[88] Michael Albiez, Rudolf Gati, Jonas Fölling, Stefan Hunsmann, Matteo Cristiani, and Markus K. Oberthaler. Direct observation of tunneling and nonlinear Self-Trapping in a single bosonic josephson junction. *Physical Review Letters*, 95(1) :010402, June 2005.

[89] S. Levy, E. Lahoud, I. Shomroni, and J. Steinhauer. The a.c. and d.c. josephson effects in a Bose-Einstein condensate. *Nature*, 449(7162) :579–583, October 2007.

[90] Anthony J. Leggett. Bose-Einstein condensation in the alkali gases : Some fundamental concepts. *Reviews of Modern Physics*, 73(2) :307, April 2001.

[91] Claude Cohen-Tannoudji, Bernard Diu, and Franck Laloë. *Mécanique quantique I*. Hermann, October 1997.

[92] Wei-Min Zhang, Da Hsuan Feng, and Robert Gilmore. Coherent states : Theory and some applications. *Reviews of Modern Physics*, 62(4) :867, October 1990.

[93] C Gross, T Zibold, E Nicklas, J Esteve, and MK Oberthaler. Nonlinear atom interferometer surpasses classical precision limit. *Nature*, 464(7292) :1165–1169, April 2010.

[94] Julian Grond, Ulrich Hohenester, Jörg Schmiedmayer, and Augusto Smerzi. Mach-Zehnder interferometry with interacting trapped Bose-Einstein condensates. *Physical Review A*, 84(2) :023619, 2011.

[95] H. Cable, F. Laloë, and W. J. Mullin. Formation of NOON states from fock-state Bose-Einstein condensates. *Physical Review A*, 83(5) :053626, May 2011.

[96] A. Sinatra and Y. Castin. Phase dynamics of Bose-Einstein condensates : Losses versus revivals. *The European Physical Journal D - Atomic, Molecular and Optical Physics*, 4(3) :247–260, December 1998.

[97] G. Ferrini, D. Spehner, A. Minguzzi, and F. W. J. Hekking. Noise in bose josephson junctions : Decoherence and phase relaxation. *Physical Review A*, 82(3) :033621, 2010.

[98] Michael W. Jack. Decoherence due to Three-Body loss and its effect on the state of a Bose-Einstein condensate. *Physical Review Letters*, 89(14) :140402, 2002.

[99] Xiaobing Luo, Jun Xu, Huijun Wan, and Yu Guo. Quantum tunnelling of a weakly open Bose–Einstein condensate in a double well under periodic driving. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 43(24) :245301, December 2010.

[100] B Bonnard, O Cots, N Shcherbakova, and D Sugny. The energy minimization problem for two-level dissipative quantum systems. *Journal of Mathematical Physics*, 51(9), September 2010.

[101] M. Lapert, Y. Zhang, M. Braun, S. J. Glaser, and D. Sugny. Singular extremals for the Time-Optimal control of dissipative spin 12 particles. *Physical Review Letters*, 104(8) :083001, February 2010.

[102] L Bomble, A Chenel, C Meier, and M Desouter-Lecomte. Local control of non-adiabatic dissociation dynamics. *The Journal of Chemical Physics*, 134(20), May 2011.

[103] TJ Penfold, GA Worth, and C Meier. Local control of multidimensional dynamics. *The Journal of Chemical Physics*, 12(48) :15616–15627, 2010.

[104] V Engel, C Meier, and DJ Tannor. LOCAL CONTROL THEORY : RECENT APPLICATIONS TO ENERGY AND PARTICLE TRANSFER PROCESSES IN MOLECULES. *Advances in Chemical Physics*, 141 :29–101, 2009.

[105] Domenico D'Alessandro. *Introduction to Quantum Control and Dynamics*. Chapman & Hall/-CRC, July 2007.

[106] Herschel Rabitz, Michael Hsieh, and Carey Rosenthal. Landscape for optimal control of quantum-mechanical unitary transformations. *Physical Review A*, 72(5) :052337, November 2005.

[107] Herschel Rabitz, Michael Hsieh, and Carey Rosenthal. Optimal control landscapes for quantum observables. *The Journal of Chemical Physics*, 124(20) :204107, 2006.

[108] Felix Platzer, Florian Mintert, and Andreas Buchleitner. Optimal dynamical control of Many-Body entanglement. *Physical Review Letters*, 105(2) :020501, July 2010.

[109] T Zibold, E Nicklas, C Gross, and MK Oberthaler. Classical bifurcation at the transition from rabi to josephson dynamics. *Physical Review Letters*, 105(20), November 2010.

[110] S. G. Schirmer, H. Fu, and A. I. Solomon. Complete controllability of quantum systems. *Physical Review A*, 63(6) :063410, May 2001.

[111] T. Schulte-Herbrüggen, A. Spörl, N. Khaneja, and S. J. Glaser. Optimal control-based efficient synthesis of building blocks of quantum algorithms : A perspective from network complexity towards time complexity. *Physical Review A*, 72(4) :042331, October 2005.

[112] M Mirrahimi, P Rouchon, and G Turinici. Lyapunov control of bilinear schrodinger equations. *Automatica*, 41(11) :1987–1994, November 2005.

[113] M. Lapert, Y. Zhang, M. Braun, S. J. Glaser, and D. Sugny. Geometric versus numerical optimal control of a dissipative spin-12 particle. *Physical Review A*, 82(6) :063418, December 2010.

[114] Tamar Seideman. Rotational excitation and molecular alignment in intense laser fields. *The Journal of Chemical Physics*, 103(18) :7887, 1995.

[115] B Bonnard and D Sugny. TIME-MINIMAL CONTROL OF DISSIPATIVE TWO-LEVEL QUANTUM SYSTEMS : THE INTEGRABLE CASE. *SIAM Journal on Control and Optimization*, 48(3) :1289–1308, 2009.

[116] Y Zhang, M Lapert, D Sugny, M Braun, and SJ Glaser. Time-optimal control of spin 1/2 particles in the presence of radiation damping and relaxation. *The Journal of Chemical Physics*, 134(5), February 2011.

[117] Michael Carl, Mark Bydder, Jiang Du, Atsushi Takahashi, and Eric Han. Optimization of RF excitation to maximize signal and t2 contrast of tissues with rapid transverse relaxation. *Magnetic Resonance in Medicine : Official Journal of the Society of Magnetic Resonance in Medicine / Society of Magnetic Resonance in Medicine*, 64(2) :481–490, August 2010. PMID : 20665792.

[118] Michael A. Nielsen and Isaac L. Chuang. *Quantum Computation and Quantum Information*. Cambridge University Press, 1 edition, January 2004.

[119] B Bonnard, N Shcherbakova, and D Sugny. THE SMOOTH CONTINUATION METHOD IN OPTIMAL CONTROL WITH AN APPLICATION TO QUANTUM SYSTEMS. *ESAIM-Control Optimisation and Calculus of Variations*, 17(1) :267–292, 2011.

[120] JS Li, J Ruths, and D Stefanatos. A pseudospectral method for optimal control of open quantum systems. *The Journal of Chemical Physics*, 131(16), October 2009.

[121] II Maximov, Z Tosner, and NC Nielsen. Optimal control design of NMR and dynamic nuclear polarization experiments using monotonically convergent algorithms. *The Journal of Chemical Physics*, 128(18), May 2008.

[122] E. Assémat, M. Lapert, Y. Zhang, M. Braun, S. J. Glaser, and D. Sugny. Simultaneous time-optimal control of the inversion of two spin-12 particles. *Physical Review A*, 82(1) :013415, July 2010.

[123] Thomas E. Skinner, Kyryl Kobzar, Burkhard Luy, M. Robin Bendall, Wolfgang Bermel, Navin Khaneja, and Steffen J. Glaser. Optimal control design of constant amplitude phase-modulated pulses : Application to calibration-free broadband excitation. *Journal of Magnetic Resonance*, 179(2) :241–249, April 2006.

[124] B Bonnard, M Chyba, and D Sugny. Time-Minimal control of dissipative Two-Level quantum systems : The generic case. *IEEE Transactions on Automatic Control*, 54(11) :2598–2610, November 2009.

[125] Velimir Jurdjevic. *Geometric Control Theory*. Cambridge University Press, December 1996.

[126] S. G. Schirmer, I. C. H. Pullen, and P. J. Pemberton-Ross. Global controllability with a single local actuator. *Physical Review A*, 78(6) :062339, December 2008.

[127] Reuven Eitan, Michael Mundt, and David J. Tannor. Optimal control with accelerated convergence : Combining the krotov and quasi-Newton methods. *Physical Review A*, 83(5) :053426, May 2011.

Développement de nouvelles techniques de contrôle optimal en dynamique quantique : de la Résonance Magnétique Nucléaire à la physique moléculaire

Résumé : L'objectif de cette thèse est d'appliquer la théorie du contrôle optimal à la dynamique de systèmes quantiques. Le premier point consiste à introduire dans le domaine du contrôle quantique des outils de contrôle optimal initialement développés en mathématique. Cette approche a ensuite été appliquée sur différent types de systèmes quantiques décrit par une grande ou une petite dimension. La première partie du manuscrit introduit les différents outils de contrôles utilisés avec une approche adaptée à un public de physiciens. Dans la seconde partie, ces techniques sont utilisées pour contrôler la dynamique des spins en RMN et IRM. La troisième partie s'intéresse au développement de nouveaux algorithmes itératifs de contrôle optimal appliqués au contrôle par champ laser de la dynamique rotationnelle des molécules linéaires en phases gazeuse ainsi qu'au développement d'une stratégie de contrôle simple permettant de délocaliser une molécule dans un plan. La quatrième partie traite le contrôle en temps minimum d'un condensat de Bose-Einstein à deux composantes. La dernière partie permet de comparer qualitativement et quantitativement les différentes méthodes de contrôle optimal utilisées. Les seconde et troisième parties ont également bénéficier de l'implémentation expérimentale des solutions de contrôle optimal obtenues.

Mots clefs : contrôle optimal, contrôle quantique, principe du maximum de Pontryagin (PMP), imagerie par résonance magnétique (IRM), résonance magnétique nucléaire (RMN), alignement moléculaire, contrôle local, algorithme monotone, algorithme de Krotov, GRAPE, jonction Josephon bosonique

---

Developement of new techniques of Optimal Control in Quantum Dynamics : from Nuclear Magnetic Resonance to Molecular Physics

Abstract : The goal of this thesis is to apply the optimal control theory to the dynamics of quantum systems. The first part aim at introducing the tools of optimal control in quantum control which were initially developed in mathematics. This approch has been applied on different kinds of quantum system with small and large dimensions. The first part of this manuscript introduces the optimal control tools which are used with a point of view suited to a public of physicists. In the second part these techniques are used to control the dynamics of spins in NMR and MRI. The third part deals with the development of new iterative algorithms applied to the control by laser fields of the rotational dynamics of linear molecules in a gaz phases and the development of a simple control strategy allowing to delocalize a molecule in a plan. The fourth part treats the time-minimum control of a two-component Bose Einstein condensate. The last part compares the different optimal control methods used qualitatively and quantitatively. The solution found in the second and third parts have been also applied experimentally.

Key Words : Optimal Control, Quantum Control, Pontryagin Maximum Principle (PMP), Magnetic Resonance Imaging (MRI), Nuclear Magnetic Resonance (NMR), Molecular Alignment, Local Control, Monotonic Algorihtm, Krotov Algorithm, GRAPE, Bosonic Josephson Junction (BJJ)