



HAL
open science

Conception et analyse des schémas d'optimisation pour la résonance magnétique nucléaire

Nadia Jbili

► **To cite this version:**

Nadia Jbili. Conception et analyse des schémas d'optimisation pour la résonance magnétique nucléaire. Analyse classique [math.CA]. Université Paris sciences et lettres; Université de Sousse (Tunisie), 2019. Français. NNT : 2019PSLED025 . tel-03222333

HAL Id: tel-03222333

<https://theses.hal.science/tel-03222333v1>

Submitted on 10 May 2021

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.



THÈSE DE DOCTORAT
DE L'UNIVERSITÉ PSL

Préparée à l'Université Paris-Dauphine
Dans le cadre d'une cotutelle avec l'école supérieure des sciences
et de la technologie de Hammam Sousse (ESSTHS)

**Conception et analyse de schémas d'optimisation pour la
résonance magnétique nucléaire**

Design and analysis of optimization schemes for nuclear
magnetic resonance

Soutenue par

Nadia JBILI

Le 3 Décembre 2019

École doctorale n°543

École doctorale de Dauphine

Spécialité

Mathématiques

Composition du jury :

Gabriel TURINICI Professeur, Université Paris-Dauphine	<i>Président</i>
Gabriel STOLTZ Professeur, École nationale des Ponts et chaussées	<i>Rapporteur</i>
Alfio BORZI Professeur, Université de Wurtzbourg	<i>Rapporteur</i>
Virginie EURLACHER Chercheuse, École des Ponts ParisTech (CERMICS)	<i>Examinatrice</i>
Julien SALOMON Directeur de recherche, INRIA	<i>Directeur de thèse</i>
Maatoug HASSINE Professeur, Faculté des sciences de Monastir (FSM)	<i>Directeur de thèse</i>

Remerciements

La thèse, tel un long voyage est une expérience de plusieurs années avec des hauts et des bas, de riches relations humaines et surtout de moments de satisfaction. À travers ces lignes, je souhaite remercier ceux qui m'ont ouvert la voie vers ce chemin et qui ont contribué de près ou de loin à ce cheminement

Bien évidemment, c'est à mon directeur de thèse Julien Salomon que vont mes premiers remerciements. Il a été pour moi, tout au long de ma thèse, un mentor remarquable. Il m'a montré comment construire mon intuition mathématique, comment prendre du recul, comment rédiger de manière lisible... Mais au-delà de ses indéniables qualités mathématiques, c'est par ses qualités humaines qu'il a su rendre ces années agréables et enrichissantes. Il m'est parfois arrivé au cours de ma thèse d'être démotivée ; mais, invariablement, en sortant de son bureau, j'étais de nouveau confiante et prête à attaquer avec le sourire des questions passionnantes. Je lui suis aussi reconnaissante d'avoir su rester très disponible jusqu'à la fin de ma thèse, malgré une vie professionnelle chargée. Bref, un énorme merci !

J'adresse mes remerciements à Maatoug Hassine, co-encadrant de thèse, de m'avoir guidée et conseillée tout au long de ma thèse.

Je remercie ensuite l'ensemble des membres du jury, qui m'ont fait l'honneur de bien vouloir étudier avec attention mon travail : Gabriel Stoltz et Alfio Borzi pour avoir accepté d'être rapporteurs de ma thèse. Je les remercie particulièrement pour l'intérêt qu'ils ont porté à mon travail et leurs remarques pertinentes et enrichissantes, Virginie Ehrlacher pour avoir accepté d'examiner ma thèse, et enfin Gabriel Turinici pour m'avoir fait l'honneur d'accepter de présider ce jury.

Je remercie mes collaborateurs. Dominique Sugny, Khalid Hamraoui et Steffen J. Glaser, avec qui j'ai écrit mon premier (article) pendant ma carrière de doctorant. En particulier Dominique Sugny pour m'avoir accueilli à l'université de Munich. Je garde de très bons souvenirs de nos discussions avec lui concernant mes travaux sur la résonance magnétique nucléaire et je

remercie pour sa gentillesse. Je remercie Gabriel Turinici avec qui j'ai eu la chance de pouvoir travailler sur la mécanique quantique. Sa rigueur, sa capacité d'analyse des problèmes et ses très nombreuses connaissances m'ont permis de progresser et ont répondu à plusieurs de mes préoccupations. Je tiens à remercier également Mohamed Belhadj avec qui j'ai tout d'abord fait mon stage de master, pour m'avoir soutenu et encouragé et initié mes premiers pas pour accéder au monde de la recherche. J'espère pouvoir continuer à échanger avec eux.

Je remercie sans hésiter tous les membres du CEREMADE. En particulier Isabelle, Marie et César pour l'organisation au sein du CEREMADE. N'oublions pas non plus Tomas et Gilles. Je tiens ensuite à exprimer toute ma gratitude envers le personnel administratif de l'Université Paris Dauphine et de l'ESSTHS, pour leur extrême compétence, disponibilité et gentillesse.

Je tiens à remercier mes collègues docteurs et enseignants-chercheurs du département Mido qui étaient toujours là pour m'encourager et me soutenir, pendant mes deux années d'ATER, particulièrement à Khalil, Jorge et Guillaume.

Je n'oublierai pas mes co-bureaux Long, Fang, en particulier Sébastien avec qui j'ai partagé des bons moments et à tous les invités qui sont passés par notre bureau.

Mes remerciements vont aussi à ma famille et mes amis qui, avec cette question récurrente, « quand est-ce que tu la soutiens cette thèse ? », bien qu'angoissante en période fréquente de doutes, m'ont permis de ne jamais dévier de mon objectif. Merci à mes amis matheux, non matheux, colocs, et à ma chère famille de m'avoir supporté et accepté mon absence tout au long de ces années.

Toutes les pages de ce manuscrit ne suffiront pas à exprimer mon amour, mon respect et ma grande gratitude aux personnes les plus chères à mon cœur, qui m'ont supporté toutes ces années.

Table des matières

1	Introduction	1
1.1	Optimisation multi-objectifs pour les systèmes quantiques bilinéaires perturbés	1
1.1.1	Modèles et applications	1
1.1.2	Aspects mathématiques	3
1.1.3	Contributions de la thèse	4
1.2	Contrôle optimal des systèmes périodiques et applications à la résonance magnétique nucléaire	5
1.2.1	Modèles et applications	5
1.2.2	Aspects mathématiques	6
1.2.3	Aspect numériques	7
1.2.4	Contributions de la thèse	7
1.3	Algorithme de Shinnar-Le Roux	8
1.3.1	Modèles et applications	8
1.3.2	Aspects mathématiques	9
1.3.3	Contributions de la thèse	11
2	Multi-Objective Optimization for Perturbed Bilinear Quantum Systems	13
2.1	Introduction	13
2.2	Problem setting	14
2.2.1	Simultaneous minimization of perturbed quantum systems	14
2.2.2	Background on controllability results	15
2.3	Numerical methods	16
2.3.1	Multiple gradient descent algorithm	17
2.3.2	Time discretization	19
2.3.3	Full optimization algorithm	21
2.4	Illustrative examples	22

2.4.1	Optimal discrimination	24
2.4.2	Detection of perturbations	37
2.5	Conclusion and perspectives	40
3	Optimal control of Nuclear Magnetic Resonance Periodic Systems	43
3.1	Introduction	43
3.2	The periodic Bloch Equation	44
3.2.1	The Cauchy problem associated with the non-periodic Bloch equation	45
3.2.2	The periodic problem	47
3.3	Optimization Problem	50
3.3.1	Maximizing sequence	50
3.3.2	Existence of an optimum	51
3.3.3	Optimality system	53
3.4	Numerical results	55
4	Optimal periodic control of spin systems: Application to the maximization of the signal to noise ratio per unit time	57
4.1	Introduction	57
4.2	Description of the control process for the maximization of the SNR	59
4.3	Optimal periodic control of spin systems	61
4.3.1	Optimal control algorithm	61
4.3.2	Proof of the existence of periodic trajectories	62
4.4	Discrete computation	63
4.5	Numerical results	65
4.5.1	Control of a homogeneous ensemble	65
4.5.2	Extension to a spin ensemble with different offsets	68
4.6	Conclusion	68
5	Algorithme de Shinnar-Le Roux	73
5.1	Introduction	73
5.2	Contrôle des équations de Bloch	74
5.3	Problème d'optimisation	75
5.4	Principe de l'algorithme Shinnar-Le Roux	76
5.4.1	Représentation des rotations sous forme de spineurs	76
5.4.2	Algorithme de Shinnar-Le Roux	79
5.5	Conception d'impulsions par la conception des polynômes	87

TABLE DES MATIÈRES

5.6 Résultats numériques	88
A The Ernst angle solution	93
B Présentation de la méthode de Remez	95
Bibliographie	96

Chapitre 1

Introduction

Cette thèse porte sur différents problèmes issus du contrôle quantique et de la résonance magnétique nucléaire. Dans ce chapitre introductif, nous présentons les cadres généraux dans lesquels se développent nos contributions.

1.1 Optimisation multi-objectifs pour les systèmes quantiques bilinéaires perturbés

Ce chapitre présente les résultats de contrôle optimal pour des systèmes quantiques perturbés obtenus dans le cadre d'une collaboration avec G. Turinici (Université Paris Dauphine), J. Salomon (INRIA, Paris) et M. Belhadj (IPEIN à Nabeul, Tunisie). Nous commençons par une courte présentation des modèles utilisés avant d'expliquer nos contributions.

1.1.1 Modèles et applications

La théorie du contrôle quantique [144, 145, 68] consiste à manipuler des objets quantiques (molécules, atomes, \dots), principalement avec des champs lasers en incluant des termes liés à l'environnement. Durant les 20 dernières années l'analyse et l'optimisation numérique ont permis des progrès importants dans ce domaine. Ainsi, de nombreux algorithmes ont été développés pour résoudre numériquement des problèmes rencontrés par les physiciens et les chimistes [80, 146, 147]. Du point de vue de la formulation mathématique, la dynamique des systèmes quantiques est, de nombreux travaux, modélisée

par l'équation de Schrödinger :

$$\begin{cases} ih \frac{d}{dt} |\psi(t)\rangle = (H_0 - \varepsilon(t)\mu) |\psi(t)\rangle, \\ |\psi(0)\rangle = |\psi_0\rangle. \end{cases} \quad (1.1)$$

Dans ce système, l'état du système *la fonction d'onde*, à l'instant t est noté $|\psi(t)\rangle \in \mathcal{H}$. L'*espace des états* \mathcal{H} est un espace de Hilbert, qui peut être de dimension finie ou infinie. En l'absence de contrôle, le Hamiltonien du système H_0 est appelé l'*Hamiltonien interne*. Le terme $\varepsilon(t)$ correspond à un contrôle à valeurs réelles. En pratique $\varepsilon(t)$ représente l'intensité d'un laser ou d'un champ magnétique (dans le cas de la résonance magnétique nucléaire). Ce champ est couplé au système à travers l'*Hamiltonien d'interaction* μ qui correspond le plus souvent à un moment d'interaction dipolaire. le Hamiltonien complet $H_0 - \varepsilon(t)\mu$ est un opérateur auto-adjoint. Le cadre considéré est donc celui du contrôle bilinéaire¹. De nombreux problèmes consistent à déterminer un champ laser qui permet d'amener le système de son état initial vers un état proche d'un état cible donné ou d'une classe d'états spécifiques, par exemple maximisant la valeur d'une observable. Avant d'aborder ce problème, il faut dégager des critères de contrôlabilité de l'équation de Schrödinger (voir par exemple [38, 39, 40, 41, 42, 43] et [50] pour une discussion plus générale), ce qui consiste à étudier si, pour tout couple $(\psi_0, \psi_{\text{cible}}) \in (S^N(0, 1))^2$, il existe un temps final $T > 0$ et une impulsion laser $\varepsilon(t) \in L^2([0, T]; \mathbb{R})$ tels que le système partant de $\psi(t = 0) = \psi_0$ vérifie $\psi(t = T) = \psi_{\text{cible}}$. Si cette condition est remplie le système est dit *contrôlable*.

Pour la résolution numérique de (1.1), on utilise généralement des techniques de contrôle optimal basées sur des algorithmes itératifs. Dans le cas de la mécanique quantique, des algorithmes spécifiques ont été développés, les algorithmes *monotones* [80, 81, 157]. Ces derniers ont la propriété d'optimiser de manière monotone la fonctionnelle considérée. Des méthodes de type gradient ont aussi été proposées dans ce cadre [57].

D'autres questions ont été abordées dans la littérature, notamment le cas du problème de contrôle d'ensemble en présence d'incertitudes : supposons que le champ laser soit soumis à des perturbations. La perturbation qui agit à un instant donné est supposée aléatoire, et nous devons trouver un champ qui contrôle le système quelque soit sa valeur. Une réponse théorique a déjà été donnée dans le cas où les perturbations sont supposées constantes [21].

¹Cette appellation vient du fait que la variable de contrôle multiplie l'état dans l'équation d'évolution.

Chapitre 1. Introduction

Sur le plan numérique, nous avons traité ce problème en adaptant les techniques du contrôle optimal. Dans ce cas, nous reformulons le problème sous forme d'un ensemble de systèmes quantiques perturbés. En introduisant le problème d'optimisation correspondant, nous associons une fonctionnelle à chaque valeur de perturbation. Nous avons ainsi une famille de fonctionnelles à optimiser simultanément. Pour résoudre ce problème, nous présentons dans la section suivante une approche basée sur une stratégie d'optimisation multi-critère ainsi que la méthode itérative associée.

1.1.2 Aspects mathématiques

Comme nous l'avons dit ci-dessus, la conception du champ de laser pour le transfert d'un état initial à un état cible peut être réalisée à l'aide des techniques de contrôle optimal. L'application de cette approche à la mécanique quantique a commencé à la fin des années 1980 [82, 150] et donne lieu à des progrès continus dans beaucoup d'applications comme par exemple l'informatique quantique [151, 152] ou encore la cryptographie quantique [153].

Pour déterminer en pratique un contrôle, on commence par reformuler le problème sous la forme d'un problème d'optimisation via l'introduction d'une fonctionnelle, dépendant du champ laser et décrivant l'objectif et d'éventuelles contraintes additionnelles. L'objectif est alors de déterminer un contrôle qui permet de modifier la dynamique du système pour optimiser la fonctionnelle considérée. Mathématiquement, le problème se formule de la façon suivante : on cherche à optimiser J de la forme :

$$J(\psi, \varepsilon) = g(\psi(T)) + \int_0^T h(\psi(t), \varepsilon(t)) dt,$$

sous la contrainte (1.1). Le champ $\varepsilon(t)$, $t \in [0, T]$ appartient à un ensemble de contrôles admissibles, typiquement $L^2([0, T]; \mathbb{R})$. La fonction $g(\psi(T))$ rend compte de la qualité de la solution au temps final T , par exemple de la distance entre l'état du système au temps final et une cible ψ_{cible} , avec $g(\psi(T)) = \|\psi(T) - \psi_{\text{cible}}\|_2^2$ qu'on cherche à minimiser, ou encore $\langle \psi(T) | O | \psi(T) \rangle$, avec O l'observable associée à une grandeur physique que l'on souhaite maximiser. Enfin, la fonction $h(\psi(t), \varepsilon(t))$ est un coût dépendant du chemin suivi lors du processus contrôlé qui peut par exemple décrire l'énergie utilisée pour contrôler le système, comme c'est le cas en posant $h(\psi(t), \varepsilon(t)) = \alpha \varepsilon^2(t)$, où le coefficient α permet la pénalisation du contrôle pour obtenir un champ physiquement admissible. Le problème de contrôle optimal peut alors être

défini de la façon suivante :

$$\varepsilon^* = \operatorname{argmin}_{\varepsilon} J(\psi, \varepsilon).$$

Dans le cas d'un système quantique perturbé, nous introduisons une famille de fonctionnelles $\{J_k, k = 1, \dots, K\}$ à optimiser. Dans cette situation, la notion habituelle d'optimalité est remplacée par celle de l'*optimalité de Pareto*. Pour le dire simplement, le *front de Pareto* d'un problème de contrôle multi-objectif est l'ensemble des solutions telles qu'aucune autre solution n'est meilleure sur tous les objectifs. Des résultats théoriques et pratiques ont été établis par J. A. Désidéri et ses coauteurs pour cette classe de problèmes [26, 27, 28, 29]. Ils proposent en particulier un algorithme d'optimisation multi-critère dite *algorithme de descente à gradients multiples* (MGDA) qui est une généralisation de l'algorithme de plus grand descente [154] au contexte multi-objectif. Cette méthode a pour but de réduire, à chaque itération, l'ensemble des valeurs des fonctionnelles de coût $\{J_k, k = 1, \dots, K\}$ de façon simultanée (dans le cas d'un problème de minimisation). La minimisation simultanée réalisée dans MGDA repose sur un résultat simple d'analyse convexe [26, 27] selon lequel l'élément de plus petite norme de l'enveloppe convexe des gradients associés à plusieurs critères fournit une direction de descente commune.

1.1.3 Contributions de la thèse

Dans le chapitre 2, nous avons appliqué les concepts et les méthodes de l'optimisation multi-critère aux cas du contrôle quantique en présence de perturbations. Nous considérons des systèmes quantiques bilinéaires perturbés que nous traitons par minimisation simultanée. Notre approche est basée sur MGDA. En utilisant une combinaison linéaire des directions de descentes données par les gradients des fonctionnelles, nous sommes en mesure d'identifier une direction de descente commune à tous les critères lorsque le point de limite courant ε^k n'est pas optimal au sens de Pareto. Il est prouvé que l'algorithme converge vers un point de conception Pareto-stationnaire [27]. Des simulations numériques montrent l'efficacité de notre méthode. Nous avons en particulier réussi à obtenir un champ de contrôle optimal qui assure l'orientation simultanée de tout système perturbé vers un état cible à un instant T tout en évitant des trajectoires indésirables.

1.2 Contrôle optimal des systèmes périodiques et applications à la résonance magnétique nucléaire

Les chapitres 3 et 4 abordent un domaine différent d'application du contrôle quantique, à savoir le contrôle de la dynamique des spins en RMN dans le cas d'un système périodique. Le travail du chapitre 4 fait l'objet d'un article publié dans Phys. Rev. A [60]. Il a été réalisé en collaboration de J. Salomon (INRIA, Paris), D. Sugny, K. Hamraoui (Université de Bourgogne) et S. J. Glaser (Technische Universität München).

1.2.1 Modèles et applications

Différents algorithmes numériques itératifs ont été proposés pour résoudre les systèmes d'optimalité [77, 79, 80, 81, 82, 83] dans diverses domaines de la physico-chimie, comme la photochimie [66, 67], la résonance magnétique nucléaire (RMN) [84, 85, 86], l'imagerie par résonance magnétique (IRM) [87, 88, 89, 90, 91, 92, 93, 94, 95, 96] ou encore l'informatique quantique [73]. Plusieurs modifications d'algorithmes standards tels que les algorithmes de gradients ont été proposées pour tenir compte des limites et des incertitudes expérimentales [97, 98, 79, 84, 99, 100, 101, 85, 86, 102, 103], montrant ainsi leur efficacité et la possibilité de les adapter à de nouvelles classes de problèmes de contrôle.

Nous considérons dans les chapitres 3 et 4 un problème issu de la résonance magnétique nucléaire (RMN). Ce phénomène apparaît pour certains atomes possédant un spin nucléaire, propriété classique en mécanique quantique. De façon imagée, le spin correspond au mouvement de rotation de la particule sur elle-même. Dans ce cadre, des études s'intéressent au contrôle optimal d'un certain type de spin, dit *spin* 1/2, en interaction avec un environnement donné [155, 156]. Dans le cas que nous considérons dans cette thèse, l'évolution de l'état du système est décrite par des équations dites *équations de Bloch* et le contrôle est constitué de deux champs magnétiques orientés le long des axes (Ox) et (Oy) . Rappelons que du point de vue mathématique, la structure de la dynamique est la même que celle de l'équation de Schrödinger (1.1). Tous les résultats obtenus peuvent donc être étendus à ce cadre.

Le problème de contrôle non standard auquel nous nous intéressons concerne un système quantique qui évolue périodiquement sous l'application ré-

pétée et régulière d’une séquence d’impulsions appelé *scans*. Cette dynamique périodique contrôlée est cruciale dans de nombreux cas puisque le rapport signal sur bruit (SNR, Signal-to-Noise Ratio) augmente avec le nombre de scans. Dans ce cadre, l’état initial et final de la dynamique ne sont pas connus et dépendent du champ de contrôle utilisé. La littérature [122] indique que la maximisation du SNR par unité de temps est obtenu pour une particule de spin $1/2$ lorsque celle-ci est soumise à une séquence périodique d’impulsions de type Dirac (aussi appelé *pulse delta*). Cette solution a été établie théoriquement dans les années 60 par R. Ernst et ses collaborateurs [113]. Dans ce protocole, la loi de commande est donc un pulse delta caractérisé par un angle de rotation spécifique appelé l’*angle de Ernst* (voir l’annexe A). Dans ce régime, le SNR augmente comme la racine carrée du nombre de scans. En pratique, les pulse delta de Ernst sont approchée par des impulsions périodiques de durée strictement positive. Chaque période est alors composée d’un temps de détection et d’une période de contrôle où le spin est sujet à un champ magnétique radio-fréquence, qui est utilisé notamment pour garantir le caractère périodique de la dynamique.

1.2.2 Aspects mathématiques

Avant de s’intéresser à la résolution d’un problème de contrôle périodique optimal, une première étape consiste à étudier la contrôlabilité du système considéré, i.e. déterminer jusqu’à quel point il est possible de manipuler l’évolution du système et du même coup, obtenir des informations sur la régularité de la dynamique. Dans le cas non périodique, la question de la contrôlabilité en dimension infinie est complexe et généralement, seuls des résultats de contrôlabilité approchée peuvent être établis [45]. Dans le cas de l’équation de Schrödinger des résultats de contrôlabilité locale ont été établis dans [46]. Plus précisément, ce travail se concentre sur le cas linéaire et sur un domaine borné. Le contrôle intervient de manière bilinéaire sous la même forme que dans (1.1). Les auteurs ont démontré la contrôlabilité exacte locale de ce système, en tout temps positif, au voisinage de l’état fondamental, en s’appuyant notamment sur le théorème d’inversion locale classique. Ce travail améliore ainsi les résultats de [47], où l’analyse faisait appel théorème de Nash–Moser pour palier une apparente perte de régularité. Des résultats sur des questions analogues ont été établis dans [48, 49]. Pour ce qui concerne le contrôle optimal, des conditions nécessaires d’existence et de régularité concernant les équations de Schrödinger ont été données dans [54, 53, 55, 56]. Dans ces contributions, l’existence d’un optimum pour certaines fonctionnelles est ob-

Chapitre 1. Introduction

tenue par la construction d'une suite de minimisante et l'utilisation du lemme d'Aubin ou par les techniques introduites par [137].

L'analyse mathématique du contrôle de phénomènes périodiques est abordée dans l'article pionnier de Horn et Lin [107]. Le contrôle optimal des processus périodiques est également étudié mathématiquement dans le cadre d'application à la biologie [109]. Des questions d'existence et de régularité de solution, de conditions d'optimalités sont abordées dans [104, 105]. Les motivations de cette théorie (voir [104]) sont d'abord venues de l'optimisation de processus chimiques [106].

1.2.3 Aspect numériques

En RMN, l'algorithme GRAPE (Gradient Ascent Pulse Engineering [77, 51, 102]) est souvent utilisé. Il s'agit d'une méthode du type gradient qui donne de très bons résultats numériques, débouchant sur la résolution des équations d'Euler-Lagrange. Les algorithmes de type GRAPE sont par conséquent itératifs. Plus précisément, le champ de contrôle courant est utilisé pour calculer les propagations discrètes et rétrogrades qui permettent à leur tour de mettre à jour de champ de contrôle. Signalons également que dans les méthodes de type GRAPE, une méthode de line-search est utilisé en boucle interne. Celle-ci nécessite l'évaluation du coût du problème et donc de nombreuses propagations supplémentaires sont nécessaires. Il convient enfin de préciser que le nom GRAPE recouvre en fait deux algorithmes distincts. Dans la première version [77], une discrétisation a été effectuée sur l'intervalle du temps d'évolution du système : $[0, t_f]$ est décomposé en N en notant t_i tels que $t_1 = 0 \leq t_2 \leq \dots \leq t_N = t_f$ et u_i les valeurs à l'instant t_i qui sont les composantes d'un champ de contrôle u . Pour mettre à jour le nouveau champ, le gradient d'une fonctionnelle discrète est utilisé. La seconde version est basée sur le principe du maximum de Pontryagin [78]. Elle consiste à dériver le pseudo-Hamiltonien H_p par rapport à u_i et à utiliser cette dérivée pour mettre à jour le champ à chaque itération afin de converger faire la condition de maximisation $\frac{\partial H_p}{\partial u_i} = 0$.

1.2.4 Contributions de la thèse

Sur le plan théorique, nous considérons dans le chapitre 3 un problème de contrôle optimal pour les systèmes quantiques à évolution périodique en temps. Ce n'est pas un problème classique puisque l'état initial et l'état final sont inconnus. Nous prouvons d'abord l'existence d'une solution périodique

de ce problème pour un contrôle arbitraire. Ensuite, nous étudions le problème du contrôle périodique optimal, et dérivons les conditions d’optimalité associées.

Sur le plan numérique, nous présentons dans le chapitre 4 un algorithme de contrôle optimal pour la dynamique périodique de spin qui consiste à calculer itérativement un champ de contrôle maximisant une figure de mérite, tout en trouvant les états initiaux et finaux de la dynamique, qui sont donc inconnus et soumis à des conditions périodiques. À titre d’exemple, nous considérons dans une application la maximisation du rapport signal sur bruit par unité de temps d’un système de spin. Nous développons un algorithme de contrôle optimal adapté à ce problème. Cet algorithme est basé sur une approche de type GRAPE. Nous avons vérifié son efficacité pour un ensemble homogène de spins. Nous avons en particulier montré que, pour une durée de contrôle très courte, nous retrouvons numériquement la solution de Ernst. Pour des durées de contrôle plus longues, nous avons montré que l’algorithme pouvait converger vers plusieurs solutions selon le champ initial considéré. Nous avons caractérisé géométriquement ces différentes solutions. Enfin, une première étude numérique a été menée pour un ensemble inhomogène de spins avec différents *offsets*². Dans ce cas également, nous avons montré numériquement l’efficacité de l’algorithme proposé.

1.3 Algorithme de Shinnar-Le Roux

Le chapitre 5 présente une méthode analytique pour la conception des impulsions optimales en RMN. Dans les sections suivantes, nous présentons cette méthode ainsi que les aspects mathématiques sur lesquels elle se base.

1.3.1 Modèles et applications

Des stratégies alternatives aux méthodes d’optimisation classiques ont été introduites pour calculer des contrôles non linéaires d’une manière robuste. C’est le cas de l’algorithme de Shinnar-Le Roux connu sous l’abréviation SLR.

Dans ces travaux relativement anciens, une méthode de conception d’impulsions sélectives a été développée de façon indépendante par Shinnar et ses

²le mot Offset désigne la composante constante d’un champ magnétique dans une expérience de RMN.

Chapitre 1. Introduction

collaborateurs [126, 127, 128, 129, 130] et Le Roux [131]. Cet algorithme, l'algorithme SLR a ensuite été mis au point par Pauly et al. dans [132].

Cet algorithme est une méthode de conception d'impulsions radio fréquence (RF) basée sur des approximations discrètes des équations de Bloch. L'approche consiste à réduire la recherche de la solution de cette équation à la conception de deux polynômes. La conception d'impulsions RF devient alors un problème d'optimisation de polynômes, qui peut être résolu à l'aide d'algorithmes habituels de conception de filtres numériques comme par exemple l'*algorithme de Remez* [134].

L'algorithme SLR repose ainsi sur des techniques classiques de traitement du signal échantillonné, et aussi sur la représentation de rotations à l'aide de spineurs.

1.3.2 Aspects mathématiques

L'algorithme SLR réduit la conception des impulsions RF à la conception de deux polynômes en utilisant un algorithme d'approximation polynomiale. Dans le cas de l'algorithme de Remez, le polynôme obtenu est optimal au sens de Tchebychev [133], c'est à dire par rapport à la norme uniforme. Une caractérisation de ce polynôme est donnée par le théorème d'équi-oscillations de Tchebychev (également appelé théorème d'alternance). Une preuve simple de ce théorème pour la conception d'un filtre FIR minimax est présentée dans [142]. Cette contribution donne une présentation simplifiée qui utilise directement le langage de conception de filtre. Pour son application aux filtres numériques, Parks et McClellan ont proposé un algorithme basé sur la méthode de Remez [138, 139, 140, 141]. De nombreux ouvrages décrivent en détail l'algorithme de Parks-McClellan (PM) [172, 173, 135, 136].

L'algorithme PM produit un filtre FIR à phase linéaire en se basant sur la minimisation d'un critère d'erreur de Tchebychev (ou minimax) obtenu à l'aide l'algorithme de Remez. Dans cette approche, la fonction d'erreur d'approximation considérée est donnée par la formule suivante :

$$E(\omega) = W(\omega) (A(\omega) - D(\omega)),$$

où $A(\omega)$ est la réponse en amplitude d'un filtre FIR, donnée par :

$$A(\omega) = \sum_{n=0}^M a(n) \cos(n\omega). \quad (1.2)$$

où $M > 0$. Le problème de conception de Tchebychev peut être formulé comme suit : *Étant donné :*

-
1. N : longueur du filtre, $N = 2M + 1$
 2. $D(\omega)$: fonction d'amplitude souhaitée (à valeurs réelles)
 3. $W(\omega)$: fonction de pondération positive,

trouver le filtre à phase linéaire qui minimise l'erreur d'approximation de Tchebychev, définie par

$$\|E(\omega)\|_{\infty} = \max_{\omega \in [0, \pi]} |W(\omega) (A(\omega) - D(\omega))| \quad (1.3)$$

La solution à ce problème est l'approximation de Tchebychev associée à la pondération $D(\omega)$. Parce qu'elle minimise la valeur maximale de l'erreur, on l'appelle aussi solution mini-max. La caractérisation par l'équialternance est expliquée dans les paragraphes suivants.

Le théorème d'alternance : Le théorème d'alternance (voir [143]) indique que $\|E(\omega)\|_{\infty}$ atteint sa valeur maximale en $M + 2$ points et que la fonction d'erreur d'approximation change alternativement de signe sur ces $M + 2$ de ces points.

La condition d'alternance peut être formulée de la manière suivante : si $A(\omega)$ est donné par (1.2), alors une condition nécessaire et suffisante pour que $A(\omega)$ soit l'unique minimisante de (1.3) est qu'il existe au moins $M + 2$ points $\omega_1, \dots, \omega_R$ (dans l'ordre : $0 \leq \omega_1 < \omega_2 < \dots < \omega_{M+2} \leq \pi$), vérifiant

$$E(\omega_i) = (-1)^i \|E(\omega)\|_{\infty}, \text{ pour } i = 1, \dots, M + 2, \quad (1.4)$$

L'algorithme de Remez : Pour comprendre l'algorithme Remez (aussi appelé algorithme d'échange), on peut dans un premier temps écrire l'équation (1.4) comme suit : Soit $\delta := \|E(\omega)\|_{\infty}$. Alors (1.4) devient

$$W(\omega_i) (A(\omega_i) - D(\omega_i)) = (-1)^i \delta$$

ou encore

$$\sum_{n=0}^M a(n) \cos(n\omega_i) - \frac{(-1)^i \delta}{W(\omega_i)} = D(\omega_i), \text{ pour } i = 1, \dots, M + 2. \quad (1.5)$$

Si l'ensemble des points extrêmes du théorème d'alternance étaient connus à l'avance, alors la solution pourrait être trouvée en résolvant le système (1.5).

Chapitre 1. Introduction

Plus précisément, celui-ci représente un problème d'interpolation, qui peut s'écrire sous la forme matricielle suivante :

$$\begin{pmatrix} 1 & \cos(\omega_1) & \cdots & 1/W(\omega_1) \\ 1 & \cos(\omega_2) & \cdots & -1/W(\omega_2) \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ 1 & \cos(\omega_{M+2}) & \cdots & -(-1)^{M+2}/W(\omega_{M+2}) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a(0) \\ a(2) \\ \vdots \\ a(M) \\ \delta \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} D(\omega_1) \\ D(\omega_2) \\ \vdots \\ D(\omega_R) \end{pmatrix}. \quad (1.6)$$

Il ne s'agit pas d'un problème d'interpolation classique. Il y a $M + 1$ coefficients $a(n)$, mais il y a $M + 2$ points d'interpolation. Cependant, la valeur δ est également une inconnue, de sorte qu'il y a en fait un total de $M + 2$ variables et $M + 2$ équations. Si les points ω_i sont distincts, il y aura une solution unique à ce système linéaire d'équations [171].

Trouver un filtre qui minimise les critères d'erreur de Tchebychev se réduit alors à un problème de sélection de points d'interpolation, et ce processus permet d'obtenir δ .

L'algorithme d'échange Remez procède en répétant itérativement les opérations suivantes :

1. Choisir une estimation initial de $M + 2$ fréquences $0 \leq \omega_1 < \omega_2 < \cdots < \omega_{M+2} \leq \pi$.
2. Calculer δ
3. Résoudre le problème d'interpolation (1.5) sur l'ensemble de fréquences.
4. Mettre à jour les fréquences en respectant l'alternance.

1.3.3 Contributions de la thèse

Dans le chapitre 5, nous proposons une présentation mathématique de l'algorithme SLR. Le but est d'introduire avec un formalisme mathématique les étapes de la méthode. Cette présentation est complétée par quelques tests numériques.

Chapter 2

Multi-Objective Optimization for Perturbed Bilinear Quantum Systems

2.1 Introduction

The quantum control phenomena has seen a rapid development both in theory [67, 66, 1, 2, 3] and experiments [4, 5].

For a practical system, the existence of uncertainties (e.g., errors in control pulses) is unavoidable [6, 7, 8, 9, 10]. In general, the presence of field noise in quantum control is considered as problematic, but some works showed that the impact of the noise can either be constructive [11] or destructive [12].

In this work, we are interested in uncertain quantum systems, where the control may not be very well defined. The development of robust control methods is highly desirable in practical applications of quantum information technology. The basic idea is to demonstrate that effective field able to steer simultaneously a set of initial states to an arbitrary set of final states in presence of perturbations. To find a robust control, a collection of perturbed quantum system is treated with the optimal control approach [74, 13, 14, 68].

Recently, other applications consider problems requiring simultaneous optimization of several control objectives [15, 16, 17, 18, 19, 20]. In such situations the usual notion of optimality is replaced by that of Pareto optimality. The Pareto front of a multi-objective control problems is the set of all controls such that all other controls have a lower value for at least one of the objectives (see [22], [23], [24], [25]). The analysis of the Pareto front reveals the nature of conflicts and tradeoffs between different control objectives.

In this chapter, we consider the problem of simultaneous minimization of K criteria. We will show that when the current design point is not one of Pareto stationarity, the unique element ω of minimum norm in the convex hull of the gradient-vectors is nonzero, and $-\omega$ is a descent direction for all criteria simultaneously. This lead us to define the *multiple-gradient descent algorithm* which generalizes the classical steepest-descent algorithm [34, 35] to K disciplines, permitting to carry out a cooperative-optimization phase throughout which all criteria diminish at each iteration.

Let us introduce some notations that will be used throughout the paper. In the sequel, we consider the simultaneous minimization problem associated with the Schrödinger equation on a time interval $[0, T]$, with $T > 0$. Let $J_k(\varepsilon) (\forall k = 1, \dots, K)$ be K smooth functions of the vector $\varepsilon \in \mathbb{R}^N$. Assume that $\varepsilon^0 \in \mathbb{R}^N$ is an admissible design-point. We denote $g_k^0 := \nabla J_k(\varepsilon^0)$ when the gradients are known and the convex hull of the family of vectors $\{g_k^0\}_{k=1}^K$:

$$\mathcal{C} = \left\{ g \in \mathbb{R}^N \left| g = \sum_{k=1}^K \beta_k g_k^0; \beta_k \geq 0 (\forall k = 1, \dots, K); \sum_{k=1}^K \beta_k = 1 \right. \right\}.$$

In what follows, we denote by $\Re z$ the real part of a complex number z . Given a matrix M , we denote by M^T its transposed. Lastly, for $A, B \in su(N)$, let $\mathbb{L}_{A,B}$ be the Lie algebra of $su(N)$ generated by A and B .

2.2 Problem setting

2.2.1 Simultaneous minimization of perturbed quantum systems

In the present work, our goal is to solve numerically the following optimization problem:

$$\min_{\varepsilon(\cdot)} J_k(\varepsilon(\cdot)),$$

with

$$J_k(\varepsilon(t)) := \int_0^T \alpha(t) \varepsilon^2(t) dt - \langle \psi_k(T) | O_k | \psi_k(T) \rangle, \quad \forall k = 1, \dots, K. \quad (2.1)$$

Here, the last term represents the main control goal of maximizing the expectation value of the target observable O_k at the final time T ; the former term is used to restrict the fluence and shape of the control field, with $\alpha(t)$ being a weight positive convex function.

Chapter 2. Multi-Objective Optimization for Perturbed Bilinear Quantum Systems

The state ψ_k evolves from ψ_0 on $[0, T]$ according to the time dependent Schrödinger equation. For convenience, we work in atomic units, i.e., the numerical constant $\hbar = 1$, so that

$$i\partial_t\psi_k(t) = \left[H_0 - \left(\varepsilon(t) + \delta_k\varepsilon(t) \right) \mu \right] \psi_k(t). \quad (2.2)$$

In this equation, H_0 and μ are respectively the internal Hamiltonian and the external Hamiltonian, the latter representing the interaction of the system with a single control field $\varepsilon(t)$. The errors in laser field could take various forms: additively or multiplicatively [8, 9, 10]. In our case, we consider the additive form as it expressed in (2.2) : $\varepsilon(t) \mapsto \varepsilon(t) + \delta_k\varepsilon(t)$, where $\{\delta_k\varepsilon(t), k = 1, \dots, K\}$ is a predefined list of perturbations.

In order to simultaneously minimize the cost functionals J_k , we will use the so called multiple-gradient descent algorithm. The latter technique is a direct method for calculating a descent direction common to several criteria. This numerical procedure has the very convenient property to improve the criteria J_k at each iteration. For the time discretization of the gradient-vectors $\nabla J_k(\varepsilon)$, we will utilize the splitting method.

Before presenting the particular numerical methods tested in this paper, we will briefly survey a controllability result related to the perturbed quantum systems (2.2) (see [21] for more details).

2.2.2 Background on controllability results

As a fundamental aspect of quantum control theory, controllability has been widely studied for isolated (un-perturbed) systems where the control can be implemented exactly [38, 39, 40, 41, 42, 43]. However when perturbations are present a legitimate question arises in this context: what quantum states can be attained using an external field submitted to some perturbations? Can one still control the system?

Preliminaries

Let us make a Galerkin approximation. Explicitly, in the N -level approximation, the state ψ_k is expanded with respect to a basis of N orthonormal eigenstates ϕ_n of H_0 : $\psi_k = \sum_n d_{k,n}\phi_n$ where the $d_{k,n}$ are complex coefficients that satisfy the normalization condition $\sum_{i=1}^N |d_{k,i}|^2 = 1$. Here, the ϕ_n are typically chosen to be the normalized eigenstates of the internal Hamiltonian, corresponding to eigenvalues, $E_n, n = 1, \dots, N$. The eigenvalues E_n represent the energy levels of the molecule in the absence of an external laser field.

If we write the initial condition of (2.2) as $\psi_0 = \sum_n d_{0n}\phi_n$, then Schrödinger's equation leads to the following equation:

$$\dot{\mathbf{d}}_k = A\mathbf{d}_k - \left(\varepsilon(t) + \delta_k\varepsilon(t)\right)B\mathbf{d}_k, \quad \mathbf{d}_k(0) = \mathbf{d}_0, \quad (2.3)$$

where \mathbf{d}_k stands for $(d_{k,1}(t), \dots, d_{k,N}(t))^T$. The matrix A represents the reference Hamiltonian $-iH_0$, and is diagonal with entries equal to the energies $-iE_n, n = 1, \dots, N$ corresponding to the $\phi_n, n = 1, \dots, N$. Similarly the matrix B is $-i$ times the matrix representation of the dipole coupling μ . If $E_n = E_p$ for some $n \neq p$, then the system is said degenerate. If some of the levels are equispaced, $E_n - E_p = E_k - E_l$ for $(n, p) \neq (k, l), n \neq p, k \neq l$, then the system is said to have degenerate transitions.

Associated with (2.3) is the equation which describes the time evolution of the corresponding propagator $U_k(t)$ (I is an identity matrix)

$$\frac{dU_k(t)}{dt} = AU_k(t) - \left(\varepsilon(t) + \delta_k\varepsilon(t)\right)BU_k(t), \quad U_k(0) = I. \quad (2.4)$$

The matrix $U_k(t)$ evolves in the Lie group of unitary matrices $U(N)$, or, if both the matrices A and B have zero trace, in the Lie group of special unitary matrices $SU(N)$.

When the perturbation $\delta_k\varepsilon(t)$ in equation (2.4) is replaced by a constant perturbation $c_k \in \mathbb{R}$ that verifies $c_k = \delta_k\varepsilon(t) \forall t \in [0, T]$, some answers concerning the exact controllability of the perturbed bilinear quantum systems (2.4) are given by the following result:

Main result

Theorem 2.1 ([21]). *Consider the bilinear system on $SU(N)$ in equation (2.4).*

Suppose that $\mathbb{L}_{[A,B],B} = su(N)$. Then for any distinct $c_k \in \mathbb{R}, k = 1, \dots, K$, the collection of systems (2.4) is simultaneously controllable.

2.3 Numerical methods

The controllability Theorem 2.1 is not constructive in that its satisfaction does not produce a particular control field. Thus, in the present work, the controlling fields in the examples (see section 2.4) were computed using a numerical multi-criterion algorithm based on a splitting method coupled with

Chapter 2. Multi-Objective Optimization for Perturbed Bilinear Quantum Systems

an optimization algorithm called *multiple-gradient descent algorithm* [26, 27, 28, 29].

2.3.1 Multiple gradient descent algorithm

This section provides a description of the optimization strategy we follow to solve our problem.

To describe more precisely the multiple gradient descent algorithm we first need several definitions.

Basic definitions

Definition 2.1. A decision vector $\varepsilon^* \in \mathbb{R}^N$ is Pareto optimal if there does not exist another decision vector $\varepsilon \in \mathbb{R}^N$ such that $J_k(\varepsilon) \leq J_k(\varepsilon^*)$ for all $k = 1, \dots, K$ and $J_l(\varepsilon) < J_l(\varepsilon^*)$ for at least one index l .

Definition 2.2. Let ε^0 be a design-point at the center of an open ball in the admissible domain \mathbb{R}^N in which the K criteria $J_k(\varepsilon)$ ($k = 1, \dots, K$) are smooth. Let $g_k^0 = \nabla J_k(\varepsilon^0)$ be the local gradients. The design-point ε^0 is said to be Pareto-stationary if and only if there exists a convex combination of the gradient-vectors, $\{g_k^0\}$, that is equal to zero:

$$\sum_{k=1}^K \beta_k g_k^0 = 0, \quad \beta_k \geq 0 \quad (\forall k = 1, \dots, K), \quad \sum_{k=1}^K \beta_k = 1. \quad (2.5)$$

Note that if the design-point ε^0 is Pareto-optimal, it is Pareto-stationary. Thus, in general, for smooth unconstrained criteria, Pareto-stationarity is a necessary condition for Pareto-optimality. Inversely, if the smooth criteria $J_k, \forall k \in \{1, \dots, K\}$ are not Pareto-stationary at a given design-point ε^0 , descent directions common to all criteria exists.

Main results

The convex hull \mathcal{C} of $\{g_k^0\}_{k=1}^K$ is a closed set, closure of its interior U , made of the elements of \mathcal{C} associated with strictly-positive coefficients $\{\beta_k\}$ ($k = 1, \dots, K$). Hence the norm admits at least one realization of a minimum in \mathcal{C} . Secondly, \mathcal{C} is evidently convex, and the minimum is unique.

Let us denote ω the minimum-norm element in \mathcal{C} : $\omega = \text{Argmin}_{g \in \mathcal{C}} \|g\|$. Then the following holds:

$$\text{For all } g \in \mathcal{C} : (g, \omega) \geq \|\omega\|^2.$$

In summary, one is led to identify the vector

$$\omega = \sum_{k=1}^K \beta_k g_k^0 \quad (2.6)$$

by solving the following quadratic-form constrained minimization problem in \mathbb{R}^K :

$$\min_{\beta \in \mathbb{R}^K} \left\| \sum_{k=1}^K \beta_k g_k^0 \right\|^2 \quad (2.7)$$

subject to:

$$\beta_k \geq 0 \ (\forall k = 1, \dots, K), \quad \sum_{k=1}^K \beta_k = 1. \quad (2.8)$$

Note that in a finite-dimensional setting, and in a functional-space setting as well, the above problem can be solved in \mathbb{R}^K , so long as the gradients g_k^0 ($\forall k = 1, \dots, K$) and their scalar products $g_{k,l}^0 := (g_k^0, g_l^0)$ are known. Then, a call to a library procedure should be sufficient [37].

We are now ready to state the following.

Theorem 2.2 ([26]). *With the same setting as above, two cases are possible:*

- (i) *either $\omega = 0$, and the design-point ε^0 is Pareto-stationary;*
- (ii) *or $\omega \neq 0$, and at $\varepsilon = \varepsilon^0$, the vector $-\omega$ defines a descent direction common to all the criteria; if additionally ω belongs to the interior U of \mathcal{C} , the Frechet derivatives (g_k^0, ω) ($\forall k = 1, \dots, K$), and more generally the scalar product (g, ω) ($g \in \mathcal{C}$), are equal to the constant $\|\omega\|^2$.*

Theoretical Algorithm

Theorem 2.2 leads us to generalize the classical steepest-descent method to multi-objective optimization by defining the *multiple gradient descent algorithm* as the iteration whose generic step is:

- (i) Compute the normalized gradient-vectors g_k^0 , and determine the minimum-norm element ω in the convex hull \mathcal{C} of $\{g_k^0\}_{k=0}^K$. If $\omega = 0$ (or sufficiently small), stop.
- (ii) Otherwise, determine the step-size h as the largest strictly-positive real number for which all the functions $j_k(t) = J_k(\varepsilon^0 - t\omega)$ ($1 \leq k \leq K$) are monotone-decreasing over the interval $[0, h]$.
- (iii) Reset ε^0 to $\varepsilon^0 - h\omega$.

Chapter 2. Multi-Objective Optimization for Perturbed Bilinear Quantum Systems

Since at each iteration of the multiple gradient descent algorithm, all the criteria diminish, we refer to this process as a *cooperative-optimization* method.

Remark 2.1. *If the gradients are not normalized, the direction of the minimum-norm element ω is expected to be mostly influenced by the gradients of small norms in the family.*

In the numerical tests, we will need the gradient-vectors $\nabla J_k(\varepsilon)$ in their discrete form. Thus, we introduce the following time discretization of the perturbed quantum systems (2.2).

2.3.2 Time discretization

The splitting method

Consider $N \geq 1$ and a subdivision of $[0, T]$ of the form:

$$[0, T] = \bigcup_{n=0}^{N-1} I_n,$$

with $I_n = [t_n, t_{n+1}]$, $t_0 = 0 < t_1 < \dots < t_{N-1} < t_N = T$. For the sake of simplicity, we assume here that the subdivision is uniform, i.e. for $n = 0, \dots, N-1$ we assume that $t_{n+1} - t_n = T/N$; we denote $\Delta T = T/N$.

Let us introduce $\delta_k \varepsilon_j$, ε_j , α_j , $\psi_{k,j}$ that stand respectively for approximations of $\delta_k \varepsilon_j(j\Delta T)$, $\varepsilon(j\Delta T)$, $\alpha(j\Delta T)$, $\psi_k(j\Delta T)$. We denote in the following $\underline{\delta_k \varepsilon} = (\delta_k \varepsilon_j)_{0 \leq j \leq N}$, $\underline{\varepsilon} = (\varepsilon_j)_{0 \leq j \leq N}$, $\underline{\psi_k} = (\psi_{k,j})_{0 \leq j \leq N}$.

For the time discretization of the system (2.2), we utilize a propagation method based on the second-order splitting technique. For any prescribed sets $\underline{\delta_k \varepsilon}$, $\underline{\varepsilon}$, the computation of the state $\underline{\psi_k}$ is thus defined through a Strang-second-order split-operator method [30] (see also [31, 32, 33]) leading to the discretized propagation equation:

$$\begin{cases} \psi_{k,j+1} &= e^{\frac{H_0 \Delta T}{2i}} e^{-\frac{(\varepsilon_j + \delta_k \varepsilon_j) \mu}{i} \Delta T} e^{\frac{H_0 \Delta T}{2i}} \psi_{k,j}, \\ \psi_{k,0} &= \psi_0. \end{cases} \quad (2.9)$$

Computation of the gradient of the discretized functional

Consider the following discretized cost functional:

$$J_{k,N} = \langle O_k \psi_{k,N}, \psi_{k,N} \rangle - \Delta T \sum_{j=0}^{N-1} \alpha_j \varepsilon_j^2, \quad k = 1, \dots, K. \quad (2.10)$$

We introduce the propagator $P_{k,j}$ as

$$P_{k,j}(\varepsilon_j) = e^{\frac{H_0 \Delta T}{2i}} e^{-\frac{(\varepsilon_j + \delta_k \varepsilon_j) \mu}{i} \Delta T} e^{\frac{H_0 \Delta T}{2i}}.$$

Consequently, $\psi_{k,N}$ is given by:

$$\psi_{k,N} = P_{k,N-1}(\varepsilon_{N-1}) P_{k,N-2}(\varepsilon_{N-2}) \cdots P_{k,0}(\varepsilon_0) \psi_0.$$

Then

$$J_{k,N} = \langle O_k P_{k,N-1} P_{k,N-2} \cdots P_{k,0} \psi_0, P_{k,N-1} P_{k,N-2} \cdots P_{k,0} \psi_0 \rangle - \Delta T \sum_{j=0}^{N-1} \alpha_j \varepsilon_j^2.$$

Consequently, we have

$$\begin{aligned} \nabla J_{k,N|N_0} &= \nabla \left(\langle O_k P_{k,N-1} P_{k,N-2} \cdots P_{k,0} \psi_0, P_{k,N-1} P_{k,N-2} \cdots P_{k,0} \psi_0 \rangle - \Delta T \sum_{j=1}^{N-1} \alpha_j \varepsilon_j^2 \right) \Big|_{N_0} \\ &= \left\langle \frac{\partial P_{k,N_0}}{\partial \varepsilon_{N_0}} P_{k,N_0-1} \cdots P_{k,0} \psi_0, P_{k,N_0+1}^T \cdots P_{k,N-1}^T O_k P_{k,N-1} P_{k,N-2} \cdots P_{k,0} \psi_0 \right\rangle \\ &\quad + \left\langle P_{k,N_0+1}^T \cdots P_{k,N-1}^T O_k P_{k,N-1} P_{k,N-2} \cdots P_{k,0} \psi_0, \frac{\partial P_{k,N_0}}{\partial \varepsilon_{N_0}} P_{k,N_0-1} \cdots P_{k,0} \psi_0 \right\rangle \\ &\quad - 2 \Delta T \alpha_{N_0} \varepsilon_{N_0} \end{aligned}$$

where, we have

$$\frac{\partial P_{k,N_0}}{\partial \varepsilon_{N_0}} = -\frac{\Delta T}{i} e^{\frac{H_0 \Delta T}{2i}} \mu e^{-\frac{(\varepsilon_j + \delta_k \varepsilon_j) \mu}{i} \Delta T} e^{\frac{H_0 \Delta T}{2i}}.$$

By setting $\bar{\mu} = -\frac{\Delta T}{i} e^{\frac{H_0 \Delta T}{2i}} \mu e^{-\frac{(\varepsilon_j + \delta_k \varepsilon_j) \mu}{i} \Delta T} e^{\frac{H_0 \Delta T}{2i}}$, then we obtain

$$\begin{aligned} \nabla J_{k,N|N_0} &= 2\Re \langle \bar{\mu} P_{k,N_0-1} \cdots P_{k,0} \psi_0, P_{k,N_0+1}^T \cdots P_{k,N-1}^T O_k P_{k,N-1} P_{k,N-2} \cdots P_{k,0} \psi_0 \rangle \\ &\quad - 2 \Delta T \alpha_{N_0} \varepsilon_{N_0}. \end{aligned}$$

Let define $\chi_{k,j}$ as the solution of the following system:

$$\begin{cases} \chi_{k,j-1} = e^{-\frac{H_0 \Delta T}{2i}} e^{\frac{(\varepsilon_{j-1} + \delta_k \varepsilon_{j-1}) \mu}{i} \Delta T} e^{-\frac{H_0 \Delta T}{2i}} \chi_{k,j}, \\ \chi_{k,N} = O_k \psi_{k,N}. \end{cases} \quad (2.11)$$

Chapter 2. Multi-Objective Optimization for Perturbed Bilinear Quantum Systems

Then,

$$\chi_{k,N_0+1} = P_{k,N_0+1}^T \cdots P_{k,N-1}^T O_k P_{k,N-1} P_{k,N-2} \cdots P_{k,0} \psi_0,$$

and

$$\psi_{k,N_0} = P_{k,N_0-1} \cdots P_{k,0} \psi_0.$$

As consequence, we obtain the discretized gradient form:

$$\nabla J_{k,N|N_0} = 2\Re\langle \bar{\mu} \psi_{k,N_0}, \chi_{k,N_0+1} \rangle - 2\Delta T \alpha_{N_0} \varepsilon_{N_0}. \quad (2.12)$$

2.3.3 Full optimization algorithm

We can now define precisely our optimization algorithm to solve the perturbed quantum systems (2.2). In what follows we describe the principal steps of our optimization algorithm. Given a perturbation $\underline{\delta}_k \varepsilon$ and tolerance ($\text{Tol} \geq 0$) a precision required.

Step 1: Set an initial control field $\underline{\varepsilon}^0$.

Step 2: Set $l = 1$ and $\underline{\varepsilon}^l = \underline{\varepsilon}^0$.

Step 3: Propagate $\psi_{k,0}^l = \psi_0$ forward in time using $\underline{\varepsilon}^l$ according to (2.9) to obtain $\psi_{k,N}^l$.

Step 4: Propagate $\chi_{k,N}^l = O_k \psi_{k,N}^l$ backward in time using field $\underline{\varepsilon}^l$ according to (2.11) to obtain $\chi_{k,0}^l$.

Step 5: Evaluate the cost functionals $J_{k,N}$ ($k = 1, \dots, K$) according to equation (2.10).

Step 6: Compute the gradient $\nabla J_{k,N}$, ($k = 1, \dots, K$) according to (2.12).

Step 7: Identify ω as the norm-minimal element in the convex hull of $\{\nabla J_{k,N}, k = 1, \dots, K\}$. If $\|\omega\| \leq \text{Tol}$, then the algorithm stops and declare that the optimal control laser field is obtained. Else, go to Step 8.

Step 8: The electric field for the ($l := l + 1$) iteration is taken as

$$\underline{\varepsilon}^{l+1} = \underline{\varepsilon}^l - \rho^l \omega,$$

where ρ is determined by the line search, which makes $\underline{\varepsilon}^{l+1}$ generate the minimum value of $J_{k,N}$.

Return to step 3 with the new field $\underline{\varepsilon}^{l+1}$.

Remark 2.2. *To compute ω , a call to the quadratic programming function `qp` based on the OCTAVE Optimization Toolbox should be sufficient (see [37] for more details).*

2.4 Illustrative examples

This section aims at presenting some numerical results obtained with our approach. The objective is to find an optimal control field capable to simultaneously steer each perturbed quantum system from a given initial state to an arbitrary target. Two kinds of numerical results are considered here:

- Optimal discrimination of multiple perturbed quantum systems.
- Detection of perturbations.

For numerical tests concerning the optimal control of multiple perturbed quantum systems, we will consider two families of perturbations:

- One-dimensional perturbations: the perturbations are constant uniformly spaced on the interval $[0, T]$ taking values in $[-0.1, 0.1]$.
- Multi-dimensional perturbations: we take here more physical perturbations given by harmonic functions (see section 2.4.1, equation (2.14)).

In all the simulations, we choose the following model five-level system extracted from the literature [21, 39], having internal Hamiltonian and dipole moment matrices:

$$A = \begin{pmatrix} 1.0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1.2 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1.3 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 2.0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 2.15 \end{pmatrix}, \quad B = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 1 & 1 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & 1 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & 1 \\ 1 & 1 & 1 & 0 & 0 \\ 1 & 1 & 1 & 0 & 0 \end{pmatrix}.$$

Define $A = -i[H_0 - \frac{1}{5}\text{Tr}(H_0).Id]$, and $B = -i\mu$ so that A and B belong to $su(5)$.

The initial wave function ψ_0 is initially in the ground state ϕ_1 of the internal Hamiltonian H_0 . The initial control field is constrained to the following

Chapter 2. Multi-Objective Optimization for Perturbed Bilinear Quantum Systems

form:

$$\varepsilon^0(t) = \varepsilon_0 \exp \left[- \left((t - T/2)/\sigma \right)^2 \right] \sum_{l=1}^L a_l \cos(\omega_l t), \quad (2.13)$$

in which ε_0 , σ , and all the frequencies ω_l are fixed beforehand, while all the amplitude a_l take values in the interval $[0, 1]$. The control pulse in equation (2.13) has the parameters $T = 600$, $\sigma = 130$ and $\varepsilon_0 = 1$. In the numerical tests, the frequencies ω_l correspond to all possible transitions between the active control states of A and B respectively, so in our case $L = 6$ in equation (2.13).

The physical objective in each cost functional J_k is to maximally project onto a target state $\psi_k(T)$ at time T balanced with a laser field penalty weighted by a positive convex function α :

$$J_k(\varepsilon) = \int_0^T \alpha(t) \varepsilon^2(t) dt - \langle \psi_k(T) | O_k | \psi_k(T) \rangle, \quad \forall k = 1, \dots, K.$$

The penalty α (see Figure 2.1) is given by the following expression :

$$\alpha(t) = \alpha_0 \left(t - \frac{T}{2} \right)^2, \quad \alpha_0 \in \mathbb{R}^+.$$

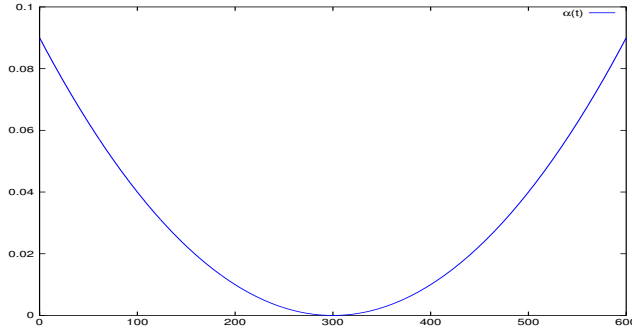


Figure 2.1: Evolution of the penalty $\alpha(t)$. ($\alpha_0 = 10^{-6}$).

The observable O_k is defined as a projection onto the target state Φ_k , which is expressed as follows:

$$\Phi_k = \frac{\sqrt{K-k} \phi_1 + \sqrt{k-1} \phi_5}{\sqrt{K-1}}, \quad \forall k = 1, \dots, K,$$

and $(\phi_j)_{1 \leq j \leq 5}$ represent the eigenvectors of H_0 . Then, the cost functional can also be written as follows:

$$J_k(\varepsilon) = \int_0^T \alpha(t) \varepsilon^2(t) dt - |\langle \psi_k(T), \Phi_k \rangle|^2, \forall k = 1, \dots, K.$$

Initially, the systems are in the ground state ϕ_1 and the targets are chosen to be the states Φ_k , $k = 1, \dots, K$. When $\alpha(t) = 0$ the minimum possible value for J_k is -1 , which corresponds to 100% overlap with the target state Φ_k ; as $\alpha(t) > 0$ increases, this global optimum value will increase.

Remark 2.3. *For the sake of presentation, throughout the following numerical simulations we will consider only maximization of cost functionals; any control problem can be easily reformulated from minimization to maximization and vice versa by changing the sign of the cost functional.*

2.4.1 Optimal discrimination

Controlling a system may be expressed as a matter of high quality discrimination, whereby the control field steers the evolving quantum system dynamics out of the desired channel, while diminishing competitive flux into other undesirable channels.

One-dimensional perturbations

In the illustrations below the perturbations are considered as equidistant constant over the interval $[0, T]$, taking values in the interval $[-0.1, 0.1]$.

The dimension of the Lie algebra $\mathbb{L}_{[A, B], B}$ was computed with the online software from [44] and was found to be 24, i.e equal to the dimension of $su(5)$. Therefore, the hypotheses of Theorem 2.1 are verified. Then, the collection of systems (2.4) is simultaneously controllable.

Several numerical tests are proposed. The first concerns the convergence of the criterias, the second presents the optimal laser field. The last test gives a comparison between the quality of observables. These measurable quantities (laser field, criterias, observables) allow us to know the paths followed by the wave functions. For more information on the behavior of perturbed quantum systems during the control, we calculated the populations of the eigenstates of the internal Hamiltonian H_0 for two cases: $K = 4$ and $K = 8$ (see Figures 2.2 and 2.3).

Chapter 2. Multi-Objective Optimization for Perturbed Bilinear Quantum Systems

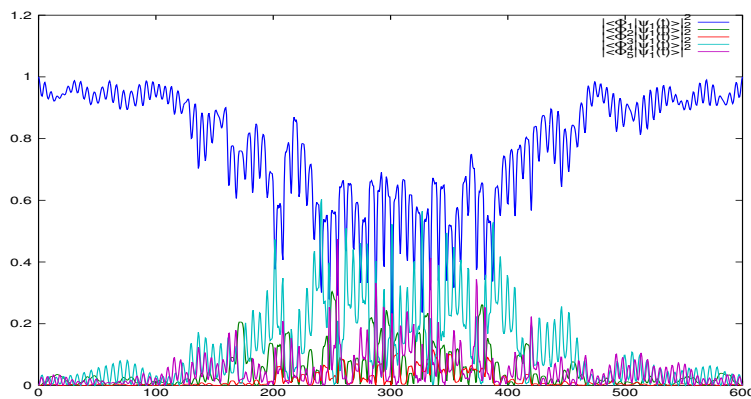


Figure 2.2: The evolution of the first system for the case $K = 4$, for the optimal field found by the multi-criterion algorithm in section 2.3.3. Knowing that the initial state is ϕ_1 and the target state is ϕ_5 .

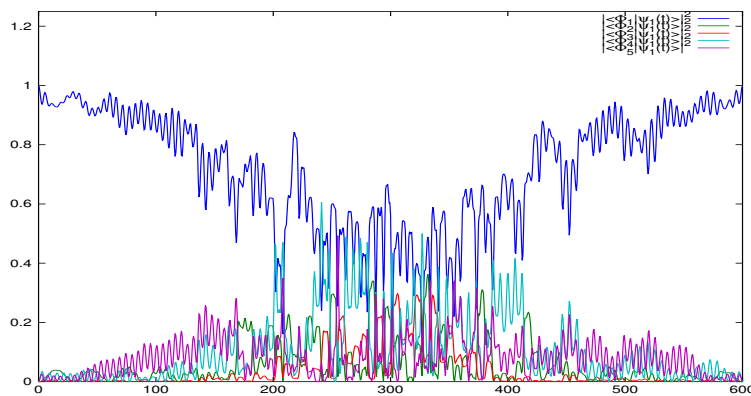


Figure 2.3: The evolution of the first system for the case $K = 8$. Knowing that the initial state is ϕ_1 and the target state is ϕ_5 .

Convergence of the cost functionals. Figure 2.4 shows the evolution of the values of the functionals versus the number of iteration steps. We remark that each cost functional increases at each iteration, making a plateau after 10 iterations. The first 10 steps give the major contributions to obtain almost 90% of their maximum value of the optimized objective functional J_k . For the case $K = 8$, a similar behavior is obtained.

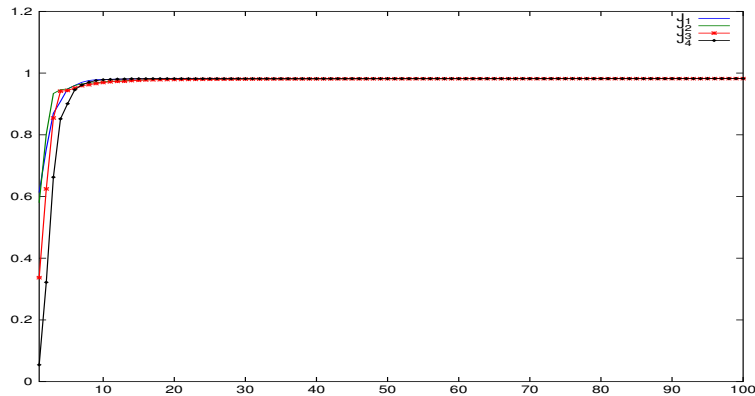


Figure 2.4: Evolution of the cost functionals vs the number of iterations ($K = 4$).

Optimal laser field. The laser fields able to simultaneously steer each perturbed quantum system to its given target state as well as their spectrum are shown in the Figures 2.6 and 2.7.

Comparison of observables. We first present the evolution of $\langle O_k \rangle$ values throughout the multi-criterion algorithm optimization process which displayed in Figures 2.8 and 2.10. Each observable reaches 100% of its maximum value. We also find that the observable O_K has a speed of convergence less slow than the others. Then, we will give an example with O_K showing that it realized his final objectif while avoiding the other targets.

First case $K = 4$: We can see from the two Figures 2.8 and 2.9 that the state ψ_1 which achieves 100% quality for the observable O_1 has 0% quality for the observable O_4 , the state ψ_2 which realizes 100% quality for the observable O_2 has 33% quality for the observable O_4 and the state ψ_3 which attains 100%

Chapter 2. Multi-Objective Optimization for Perturbed Bilinear Quantum Systems

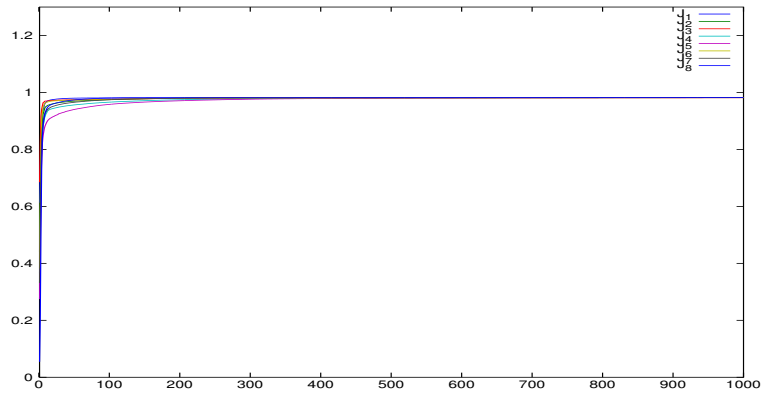


Figure 2.5: Evolution of the cost functionals vs the number of iterations ($K = 8$).

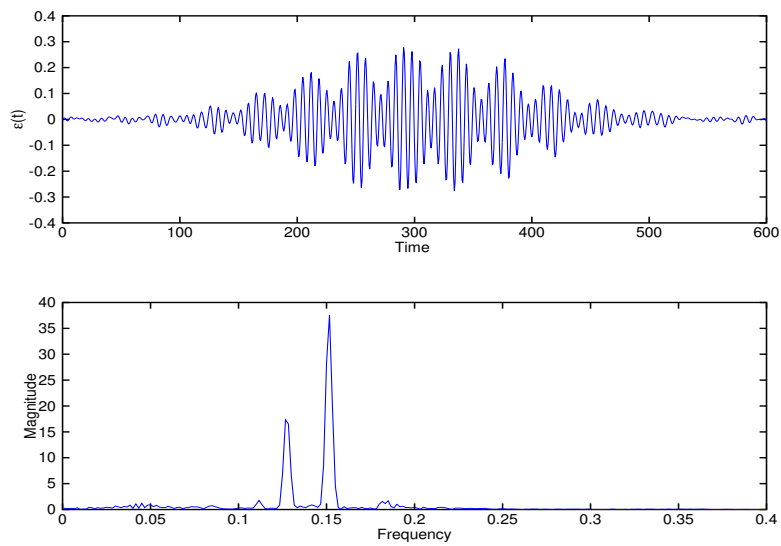


Figure 2.6: The control field used to reach the targets Φ_k ($k = 4$) and its spectrum.

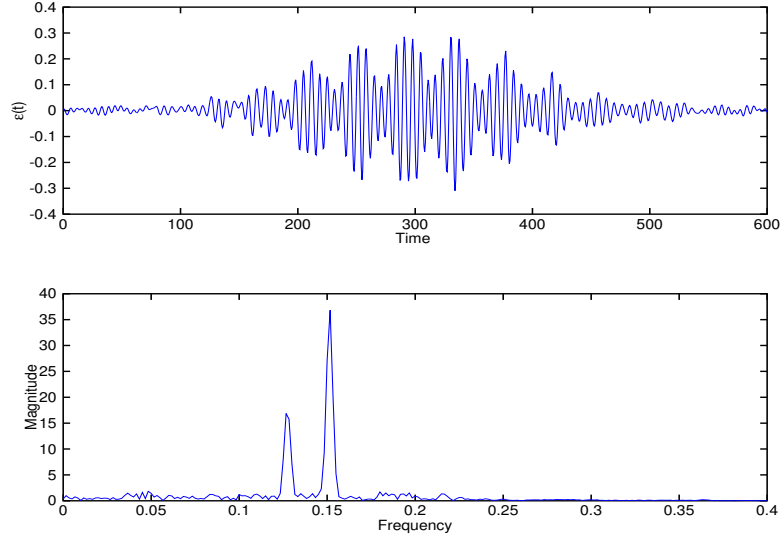


Figure 2.7: The control field used to reach the targets Φ_k ($k = 8$) and its spectrum.

quality for the observable O_3 has 66% quality for the observable O_4 . These results are summarized in Table 2.1.

$\langle O_4 \psi_1(T), \psi_1(T) \rangle$	0%
$\langle O_4 \psi_2(T), \psi_2(T) \rangle$	33%
$\langle O_4 \psi_3(T), \psi_3(T) \rangle$	66%
$\langle O_4 \psi_4(T), \psi_4(T) \rangle$	100%

Table 2.1: Discrimination quality.

Second case $K = 8$: The Figures 2.10, 2.11 and the following table 2.2 confirm the previous interpretation. Indeed, the observable O_8 achieves its target while avoiding the other undesirable channels.

Chapter 2. Multi-Objective Optimization for Perturbed Bilinear Quantum Systems

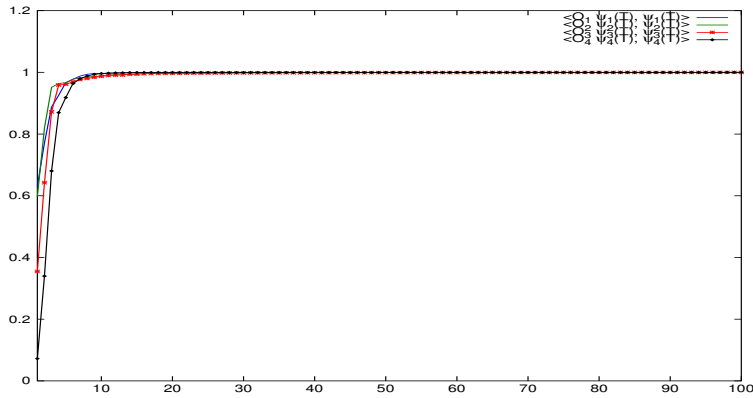


Figure 2.8: Evolution of $\langle O_k \Psi_k(T), \Psi_k(T) \rangle$ vs the number of iterations

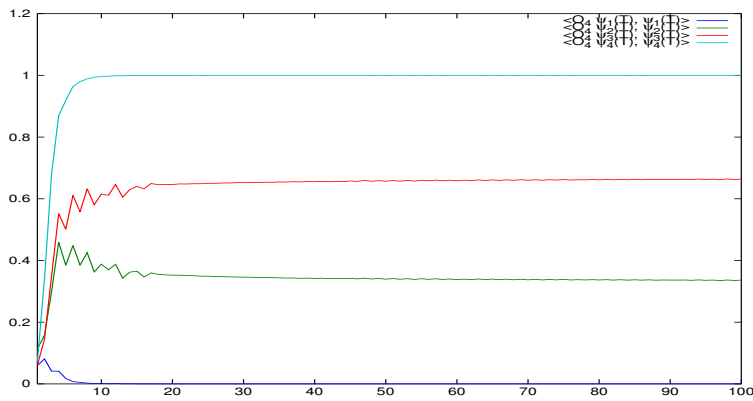


Figure 2.9: Evolution of $\langle O_4 \Psi_k(T), \Psi_k(T) \rangle$ vs the number of iterations

$\langle O_8 \psi_1(T), \psi_1(T) \rangle$	0%
$\langle O_8 \psi_2(T), \psi_2(T) \rangle$	14%
$\langle O_8 \psi_3(T), \psi_3(T) \rangle$	28%
$\langle O_8 \psi_4(T), \psi_4(T) \rangle$	42%
$\langle O_8 \psi_5(T), \psi_5(T) \rangle$	58%
$\langle O_8 \psi_6(T), \psi_6(T) \rangle$	70%
$\langle O_8 \psi_7(T), \psi_7(T) \rangle$	85%
$\langle O_8 \psi_8(T), \psi_8(T) \rangle$	100%

Table 2.2: Discrimination quality.

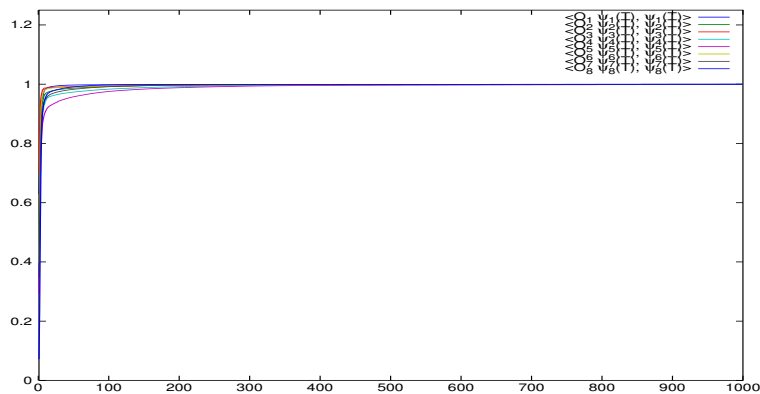


Figure 2.10: Evolution of $\langle O_k \Psi_k(T), \Psi_k(T) \rangle$ vs the number of iterations

Chapter 2. Multi-Objective Optimization for Perturbed Bilinear Quantum Systems

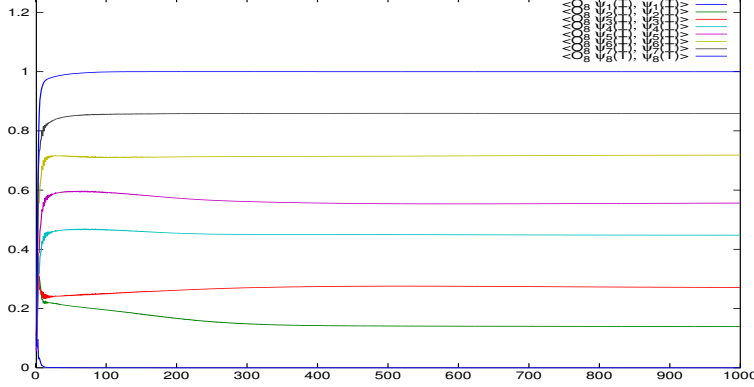


Figure 2.11: Evolution of $\langle O_8 \Psi_k(T), \Psi_k(T) \rangle$ vs the number of iterations

Remark 2.4. Numerically, it can be seen that:

$$\langle O_K \psi_k(T), \psi_k(T) \rangle \simeq \frac{k-1}{K-1}.$$

This finding confirms the following analytical calculation:

Define O_K as a projection onto the normalized eigenstate ϕ_5 , i.e. $O_K = \phi_5 \phi_5^*$.

By imposing $\psi_k(T)$ to be equal to the state Φ_k , we will have:

$$\begin{aligned} \langle O_K \psi_k(T), \psi_k(T) \rangle &= \left\langle \phi_5 \phi_5^* \left(\frac{\sqrt{K-k} \phi_1 + \sqrt{k-1} \phi_5}{\sqrt{K-1}} \right), \left(\frac{\sqrt{K-k} \phi_1 + \sqrt{k-1} \phi_5}{\sqrt{K-1}} \right) \right\rangle \\ &= \frac{\sqrt{k-1}}{\sqrt{K-1}} \left\langle \phi_5, \left(\frac{\sqrt{K-k} \phi_1 + \sqrt{k-1} \phi_5}{\sqrt{K-1}} \right) \right\rangle \\ &= \frac{k-1}{K-1}. \end{aligned}$$

Multi-dimensional perturbations

In this section, we present an other family of numerical results where the perturbations are multi-dimensional. The realistic perturbations proposed in this numerical tests have the following expression:

$$\delta_k \varepsilon(t) = \varepsilon_0 \exp \left[- \left((t - T/2) / \sigma \right)^2 \right] \sum_{l=1}^L a_l \cos(\omega_l t + \theta_l), \quad \forall k = 1, \dots, K \quad (2.14)$$

The parameters ε_0 , σ , a_l and ω_l have the same physical definition as described in formula (2.13). The parameter θ_l represents the phase which takes values in the interval $[0, 2\pi]$.

Each perturbation $\delta_k \varepsilon(t)$ is described by a pair of vectors $\left((a_\ell)_{\ell=1}^L, (\theta_\ell)_{\ell=1}^L \right)$ in a list that may be a combinations of a term in set S_1 below and in term from set S_2 below:

Set S_1 :

1. $\forall l \in \{1, \dots, L\}, a_l = 0.1$.
2. a_ℓ is a uniformly increasing sequence having values in $[-0.1, 0.1]$.
3. a_ℓ is a uniformly decreasing sequence having values in $[-0.1, 0.1]$.

Set S_2 :

1. $\forall l \in \{1, \dots, L\}, \theta_l = 0$.
2. θ_ℓ is a uniformly increasing sequence taking values in $[0, 2\pi]$ (the θ_ℓ are the angles of equidistant points on the unit circle traversed in the trigonometric sense).
3. θ_ℓ is a uniformly decreasing sequence taking values between 2π and 0.

If we make all possible combinations we obtain 9 possible perturbations. Figure 2.12 shows all possible cases. In Figure 2.13, we illustrate the perturbation $\delta_5 \varepsilon(t)$ which corresponds to the case (2.2) taken from the lists S_1 and S_2 .

We repeated the same tests as shown in section 2.4.1 using the physical perturbations. We start by presenting the Figure 2.14 which represents the populations of the eigenstates of the internal Hamiltonian H_0 .

- **Convergence of the cost functionals.** From Figure 2.15, we find that all the cost functionals are maximized, and each functional has at least 98% of qualitie.

- **Optimal laser field.** Figure 2.16 represents the sought optimal field and its spectrum.

- **Comparaison of observables.** According to the figure 2.17, 2.18 and the Table 2.3, we obtained a similar interpretation to the cases $K = 4$ and $K = 8$.

In the following, we will present a second family of numerical results concerning the detection of perturbations.

Chapter 2. Multi-Objective Optimization for Perturbed Bilinear Quantum Systems

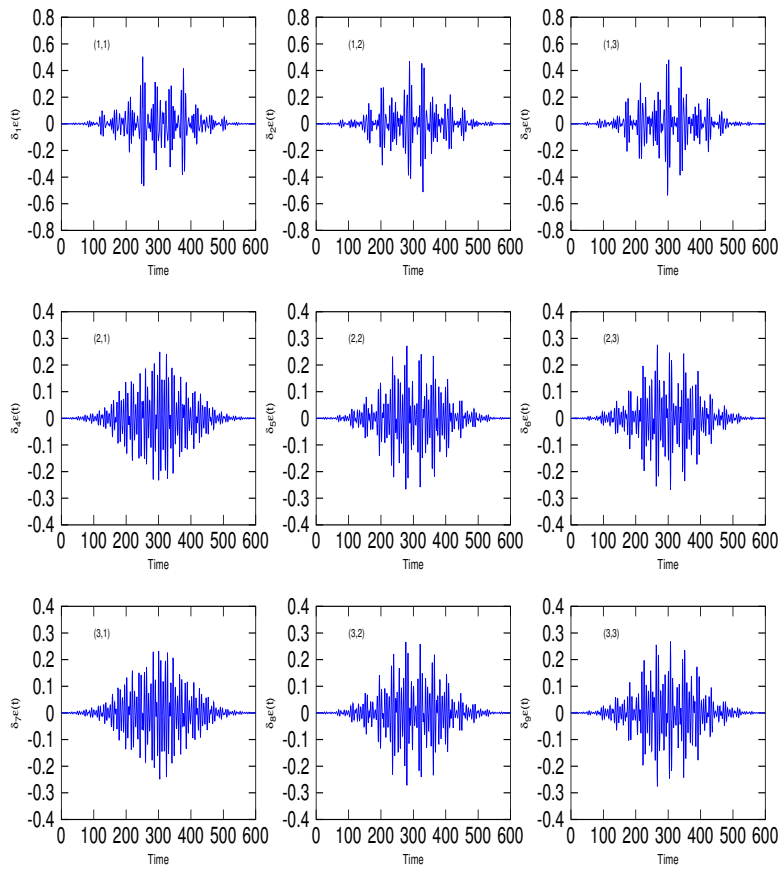


Figure 2.12: the 9 possibilities of perturbations.

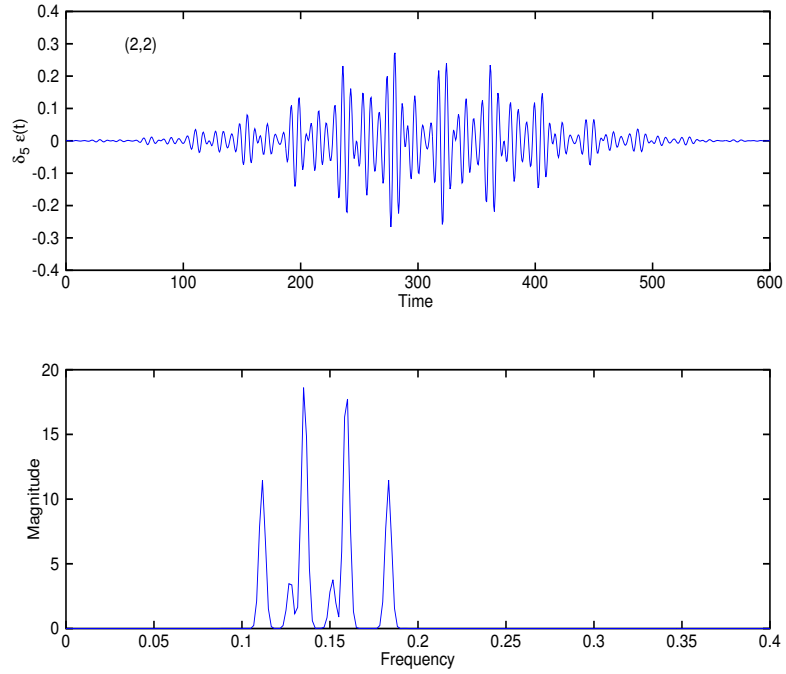


Figure 2.13: $\delta_5 \varepsilon(t)$ and its fourier spectrum.

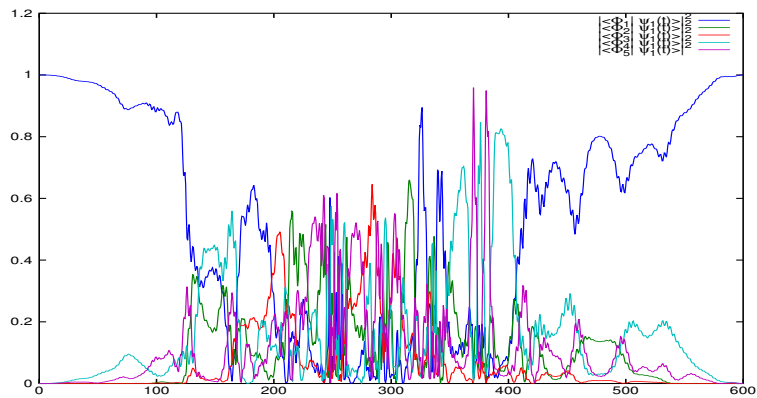


Figure 2.14: The evolution of the first system for the case $K = 9$. Knowing that the initial state is ϕ_1 and the target state is ϕ_5 .

Chapter 2. Multi-Objective Optimization for Perturbed Bilinear Quantum Systems

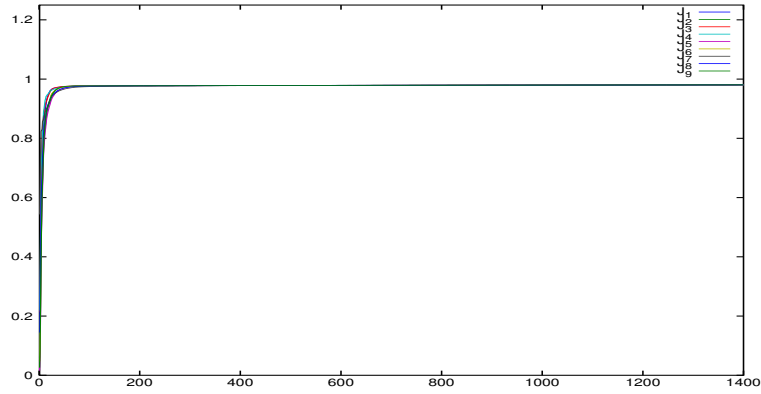


Figure 2.15: Evolution of the cost functionals vs the number of iterations ($K = 9$).

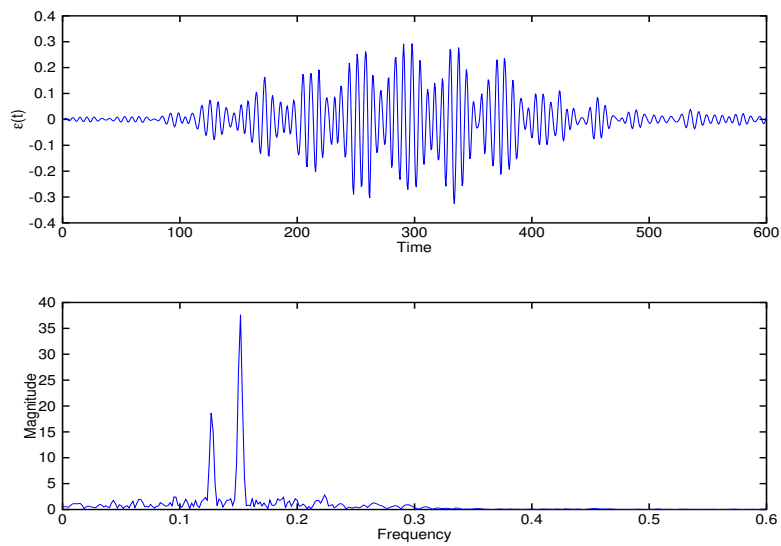


Figure 2.16: The control field used to reach the targets Φ_k ($k = 9$) and its fourier spectrum.

$\langle O_8 \psi_1(T), \psi_1(T) \rangle$	0%
$\langle O_8 \psi_2(T), \psi_2(T) \rangle$	12.5%
$\langle O_8 \psi_3(T), \psi_3(T) \rangle$	25%
$\langle O_8 \psi_4(T), \psi_4(T) \rangle$	37.5%
$\langle O_8 \psi_5(T), \psi_5(T) \rangle$	50%
$\langle O_8 \psi_6(T), \psi_6(T) \rangle$	62.5%
$\langle O_8 \psi_7(T), \psi_7(T) \rangle$	75%
$\langle O_8 \psi_8(T), \psi_8(T) \rangle$	87.5%
$\langle O_9 \psi_9(T), \psi_9(T) \rangle$	100%

Table 2.3: Discrimination quality.

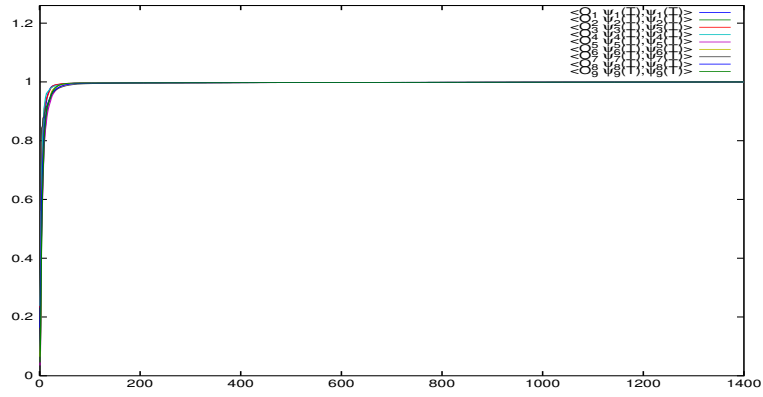


Figure 2.17: Evolution of $\langle O_k \Psi_k(T), \Psi_k(T) \rangle$ vs the number of iterations

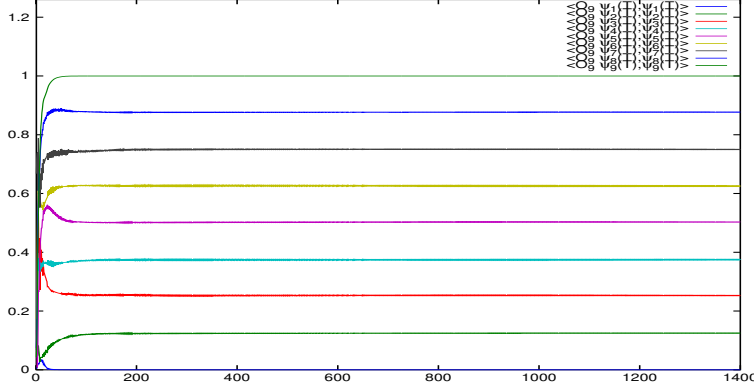


Figure 2.18: Evolution of $\langle O_9 \Psi_k(T), \Psi_k(T) \rangle$ vs the number of iterations

2.4.2 Detection of perturbations

Our multi-criterion algorithm based on the multiple-gradient descent algorithm allows to detect uncertainties and errors. Indeed:

Consider the following function:

$$\begin{aligned} f_K &: [-0.1, 0.1] \rightarrow [0, 1] \\ c_k &\mapsto \langle O_K \Psi_k(T), \Psi_k(T) \rangle \end{aligned}$$

A question that arises: Can we find a laser field allowing to render the function f_K ($K = 4, 8$) bijective?

The numerical simulations give a positive answer with the optimal laser field (see Figures 2.19 and 2.20). Indeed, $\forall y_k = \langle O_K \psi_k(T), \psi_k(T) \rangle \exists! c_k$ such that $f_K(c_k) = y_k$. (Theoretically, this amounts to impose the function to have a constant sign). This reflect the perturbation detection. On the contrary, using the initial laser field given by the equation (2.13), we obtain the curves displayed in the Figures 2.21 and 2.22, where is found that there are at least $y_k = \langle O_K \psi_k(T), \psi_k(T) \rangle$, having more than an antecedent. This does not allows to detect the uncertainties.

- **Robust control**

To test the performance of the optimal control field, several numerical tests are considered:

- $K = 8$ (1-D) \leftrightarrow $K = 30$ (1-D)

The optimal laser field obtained by $K = 8$ is utilized as initial laser field

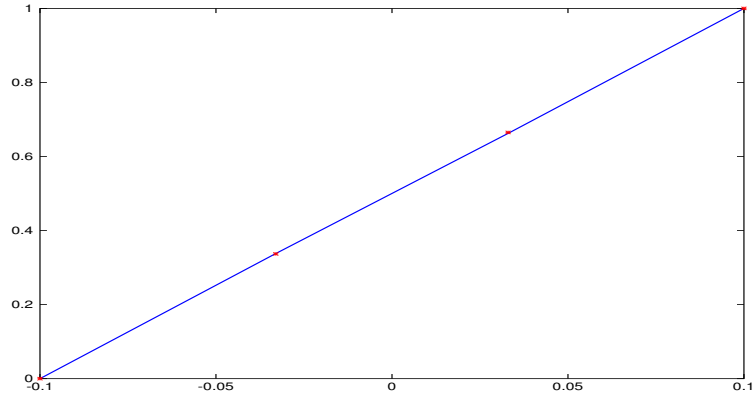


Figure 2.19: Evolution of $\langle O_4 \Psi_k(T), \Psi_k(T) \rangle$ for the optimal laser field ($K = 4$).

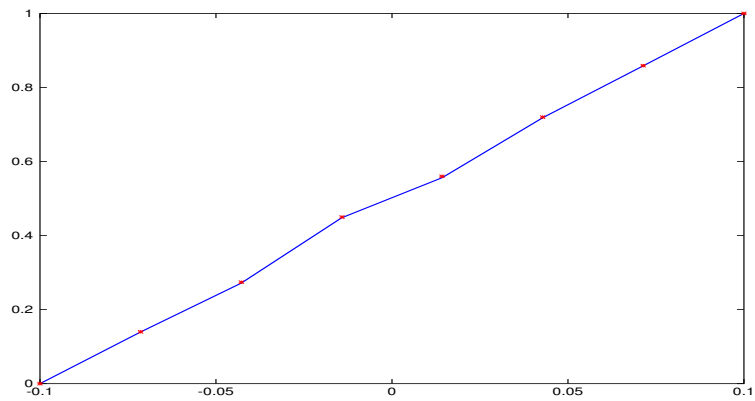


Figure 2.20: Evolution of $\langle O_8 \Psi_k(T), \Psi_k(T) \rangle$ for the optimal laser field ($K = 8$).

Chapter 2. Multi-Objective Optimization for Perturbed Bilinear Quantum Systems

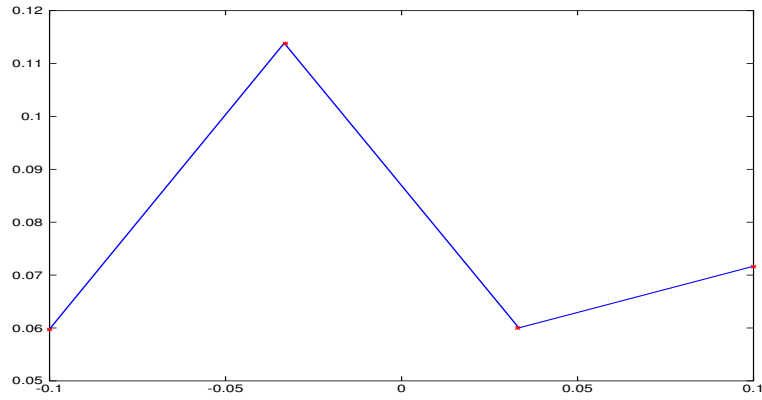


Figure 2.21: Evolution of $\langle O_4 \Psi_k(T), \Psi_k(T) \rangle$ for the initial laser field ($K = 4$).

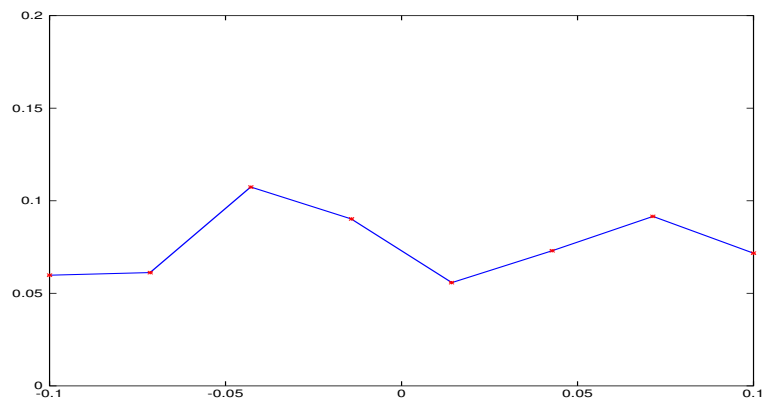


Figure 2.22: Evolution of $\langle O_8 \Psi_k(T), \Psi_k(T) \rangle$ for the initial laser field ($K = 8$).

for the case $K = 30$ when the 30 perturbations are constant and uniformly spaced on the interval $[-0.1, 0.1]$ (see Figure 2.23).

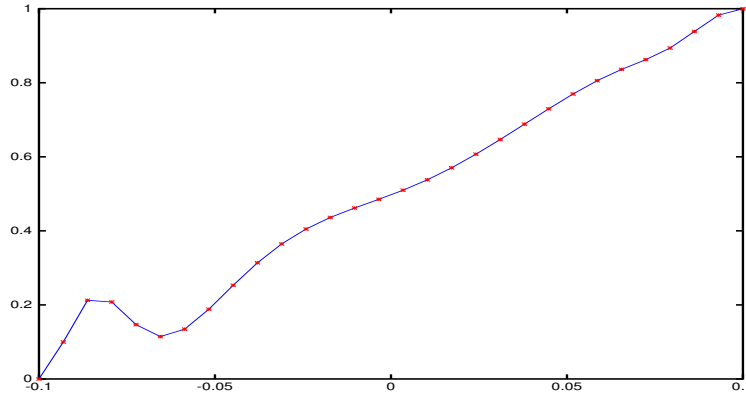


Figure 2.23: $\langle O_{30}\psi_k(T), \psi_k(T) \rangle$ vs perturbations using the optimal laser field obtained by optimizing 8 observables for the case $K = 30$.

- $K = 30$ (1-D) \leftrightarrow $K = 100$ (1-D)

We take the optimal laser field obtained for the case $K = 30$ after 4000 iteration and we used it as initial field for the case $K = 100$. From Figure 2.24, we can see that this field permits to render the function f_{100} bijective.

- $K = 9$ (Multi-D) \leftrightarrow $K = 30$ (1-D)

We follow the same idea as introduced as above which aims to research a laser field making the function f_{30} bijective. In this test, we used the optimal laser field obtained by optimizing 9 observables (where the 9 perturbations are multi-dimensional) for the case $K = 30$ where the 30 perturbations are equidistant constant (see Figure 2.25).

2.5 Conclusion and perspectives

In this work, we have applied a multi-criteria algorithm to a collection of perturbed Schrödinger equations. Our multi-optimization procedure is based on the so called the multiple gradient descent algorithm coupled with a splitting method. All the numerical results demonstrate the effectiveness of the proposed approach for optimal control of perturbed quantum systems.

Chapter 2. Multi-Objective Optimization for Perturbed Bilinear Quantum Systems

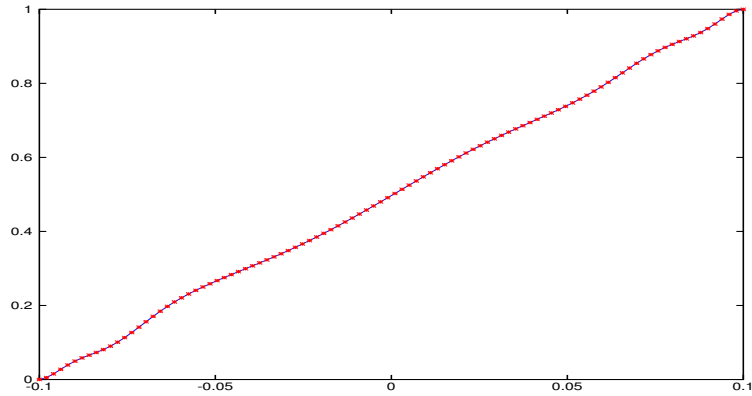


Figure 2.24: $\langle O_{100}\psi_k(T), \psi_k(T) \rangle$ vs perturbations using the optimal laser field obtained by optimizing 30 observables for the case $K = 100$.

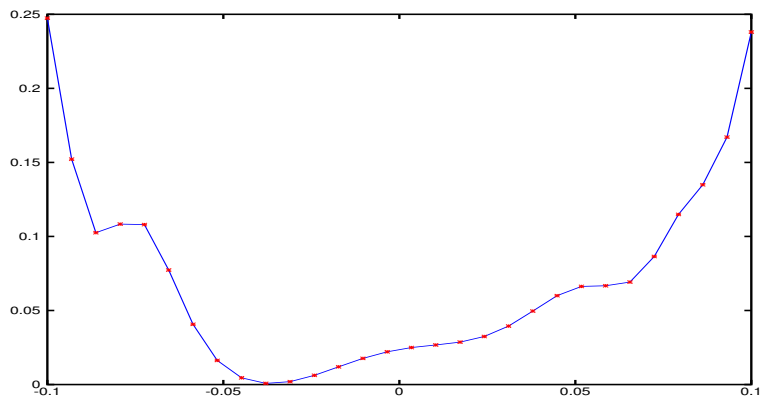


Figure 2.25: $\langle O_{30}\psi_k(T), \psi_k(T) \rangle$ vs perturbations using the optimal laser field obtained by optimizing 9 observables for the case $K = 30$.

As perspectives of future work, we can try to apply other algorithms. Besides, we can consider more complex perturbations (for example, perturbations depending on the time, \dots). Others models can be treated like the Lindblad equation or stochastic Schrödinger equation.

Chapter 3

Optimal control of Nuclear Magnetic Resonance Periodic Systems

3.1 Introduction

We consider in this chapter a question arising from NMR and MRI [110, 111, 112, 113], namely the maximization of the signal-to-noise ratio per unit time (SNR) of spin 1/2 particles. In the experiments, the SNR is practically enhanced in spin systems by using a multitude of identical cycles. In this periodic regime, the SNR increases as the square root of the number of scans. Each period of control is composed of a detection time and of a control period where the spin is subjected to a radio-frequency magnetic pulse, the latter being used to guarantee the periodic character of the overall process. A pioneering work in this field has been done by R. Ernst and his co-workers [113] in the sixties by establishing an optimal control law made of a δ -pulse characterized by a specific rotation angle, called the *Ernst angle solution*. This pulse sequence is nowadays currently used in magnetic resonance spectroscopy and imaging. Related control procedures, known as SSFP (Steady State Free Precession) have been also intensively investigated in the literature for medical applications (See, among others, Ref. [117, 118, 119, 120, 121, 114, 115, 116]).

From a mathematical point of view, some works have tackled the exact local controllability of the linear Schrödinger equation, see for example [45, 46] in the case of non-periodic processes. In the context of periodic systems, there are also several works applied on different domains [107, 106, 104, 105,

109].

In a recent paper [60], an optimal control algorithm for periodic spin dynamics has been proposed to deal with the maximization of SNR in the framework of the control of an ensemble of inhomogeneous ensemble of spins. This complex optimization problem involves the design of a control field, while finding the initial state of the dynamics associated with periodic trajectories. This work was rather related to numerical aspects and above all to applications to medical imaging.

The goal of the present chapter is to provide a mathematical framework and analyse the problem of the maximization of SNR in the case of periodic spin systems. Though we consider a single spin, all what follows also holds for an inhomogeneous ensemble of spins. More precisely, we prove in Section 3.2 the existence and uniqueness of a solution of a periodic version of the Bloch equation for a fixed control. In Section 3.3, we prove the existence of an optimal control for the maximization of SNR and present the associated optimality system. We conclude with some numerical experiments in Section 3.4.

Throughout this chapter, we use the following notations: \mathbb{R}^3 denotes the canonical 3-dimensional linear space on \mathbb{R} , $\langle \cdot, \cdot \rangle$ the usual Euclidean scalar product on \mathbb{R}^3 and $\| \cdot \|_2$ the corresponding norm, $L^2_{T_c}(0, T; \mathbb{R}^2)$ indicates the subspace of the Lebesgue space $L^2(0, T; \mathbb{R}^2)$ of functions canceling on $[T_c, T]$, $L^\infty(0, T; \mathbb{R}^3)$ denotes the usual Lebesgue's functional space, and $\mathcal{C}(0, T; \mathbb{R}^3)$ the space of continuous functions of $[0, T]$ taking values in \mathbb{R}^3 .

3.2 The periodic Bloch Equation

The optimization of the SNR per time unit that we consider corresponds to a simple scenario, described in Fig. 3.1 (see Ref. [122, 123] for details). In this picture, the point M reached at the end of the control process is the measurement point for the spin of offset ω . The corresponding spin has then a free evolution from this point to the steady state S where the pulse sequence starts. The times T_d and T_c denote the detection time (fixed by the experimental setup) and the control time, respectively.

We consider a spin 1/2 particle [112]. In a rotating frame, the motion for the spin follows the Bloch equation:

$$\begin{pmatrix} \dot{x} \\ \dot{y} \\ \dot{z} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -2\pi x/T_2 \\ -2\pi y/T_2 \\ 2\pi(1-z)/T_1 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} -\omega y + u_y(t)z \\ \omega x - u_x(t)z \\ u_x(t)y - u_y(t)x \end{pmatrix},$$

Chapter 3. Optimal control of Nuclear Magnetic Resonance Periodic Systems

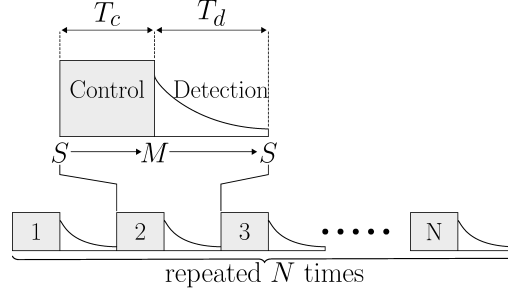


Figure 3.1: Schematic representation of the cyclic process used in the maximization of the SNR.

where the Bloch vector $X := (x, y, z)^\top$ corresponds to the state of the spin, T_1 and T_2 are the two relaxation parameters, ω the offset term and $u_x(t)$, $u_y(t)$ the two control fields. Defining $u = (u_x, u_y)$ and normalizing the time by the detection time T_d (see below for the definition) and setting $\gamma = 2\pi T_d/T_1$ and $\Gamma = 2\pi T_d/T_2$, we arrive at:

$$\dot{X} = A(u) X + D \quad (3.1)$$

where $D := (0, 0, \gamma)^\top$ and $A(u)$ is a 3×3 - matrix:

$$A(u) := \begin{pmatrix} -\Gamma & -\omega & u_y(t) \\ \omega & -\Gamma & -u_x(t) \\ -u_y(t) & u_x(t) & -\gamma \end{pmatrix},$$

with $u(t) = (u_x(t), u_y(t))$.

In our periodic problem, the initial state $X_0 = X(0)$ is an unknown of the problem, that must satisfy

$$X(T) = X_0. \quad (3.2)$$

3.2.1 The Cauchy problem associated with the non-periodic Bloch equation

We first consider the Cauchy problem associated with Eq. (3.1). Given $u \in L^2_{T_c}(0, T; \mathbb{R}^2)$ and an initial state $X_0 \in \mathbb{R}^3$, this one reads:

Find $X \in \mathcal{C}(0, T; \mathbb{R}^3)$ such that

$$\begin{cases} \dot{X}(t) &= A(u(t)) X(t) + D, \quad t \in [0, T] \\ X(0) &= X_0 \end{cases} \quad (3.3)$$

The next theorem gives existence and uniqueness of a solution of this problem.

Theorem 3.1. *There exists a unique weak solution of (3.3), i.e. a function $X \in \mathcal{C}(0, T; \mathbb{R}^3)$ satisfying*

$$X(t) = X_0 + \int_0^t [A(u(s))X(s) + D] ds, \quad (3.4)$$

for all $t \in [0, T]$.

Proof Define the matrices

$$B := \begin{pmatrix} -\Gamma & -\omega & 0 \\ \omega & -\Gamma & 0 \\ 0 & 0 & -\gamma \end{pmatrix}, \quad (3.5)$$

and

$$C(u(t)) := \begin{pmatrix} 0 & 0 & u_y(t) \\ 0 & 0 & -u_x(t) \\ -u_y(t) & u_x(t) & 0 \end{pmatrix}. \quad (3.6)$$

Note $C(u(t))$ that depends linearly on $u(t)$, so that there exists $\kappa > 0$ such that for all $Z_0 \in \mathbb{R}^3$

$$\|C(u(t))Z_0\|_2 \leq \kappa \|u(t)\|_2 \|Z_0\|_2. \quad (3.7)$$

Consider the mapping:

$$\Phi : \begin{cases} \mathcal{C}(0, T; \mathbb{R}^3) \rightarrow \mathcal{C}(0, T; \mathbb{R}^3) \\ X \mapsto \Phi(X), \end{cases}$$

where $\Phi(X)$ is defined for $t \in [0, T]$ by the Duhamel's formula:

$$\Phi(X)(t) = \exp(tB)X_0 + \int_0^t \exp((t-s)B) (C(u(s))X(s) + D) ds. \quad (3.8)$$

The operator Φ is well-defined: indeed since $X \in \mathcal{C}(0, T; \mathbb{R}^3)$ and $u \in L^2_{T_c}(0, T; \mathbb{R}^2)$, $s \mapsto A(u(s))X(s) + D$ is Lebesgue integrable, and $t \mapsto \Phi(X)(t) \in \mathcal{C}(0, T; \mathbb{R}^3)$ according to the fundamental theorem of calculus ($\Phi(X)$ is actually absolutely continuous). Consider now the contraction property of Φ . Let X_1 and $X_2 \in \mathcal{C}(0, T; \mathbb{R}^3)$. As we know that $\exp((t-s)B)$ is a bounded function, we note by μ its upper bound such that

$$\|\exp((t-s)B)\| \leq \mu. \quad (3.9)$$

Chapter 3. Optimal control of Nuclear Magnetic Resonance Periodic Systems

Using (3.8), (3.7) and (3.9), we obtain

$$\|\Phi(X_2) - \Phi(X_1)\|_{L^\infty(0,T;\mathbb{R}^3)} \leq \sqrt{T}\mu\kappa\|u\|_{L^2(0,T;\mathbb{R}^2)}\|X_2 - X_1\|_{L^\infty(0,T;\mathbb{R}^3)}.$$

If $\|u\|_{L^2(0,T;\mathbb{R}^2)}$ is small enough, the latter inequality implies that Φ is a contraction. We deduce from the Banach fixed point theorem that Φ has a unique fixed point, hence (3.3) admits a unique solution $X \in \mathcal{C}(0, T; \mathbb{R}^3)$.

If $\|u\|_{L^2(0,T;\mathbb{R}^2)}$ is not small, we consider the partition $[0, T] = \cup_{i=0}^{N-1} [T_i, T_{i+1}]$, with $T_0 = 0$ and $T_N = T$, such that $\|u\|_{L^2(T_i, T_{i+1}; \mathbb{R}^2)}$ is small enough. The existence is obtained by applying the previous result on each interval $[T_i, T_{i+1}]$ for all $i \in \{0, \dots, N-1\}$.

Finally, remark that if X is a fixed point of Φ , then the right-hand sides of (3.4) and (3.8) are almost everywhere differentiable and that their derivatives are almost everywhere equal. A weak solution (3.3) consequently consists in a fixed point of Φ . The result follows. \square

Remark 3.1. *The existence of the solution of (3.3) can be proved also by using Carathéodory's existence theorem since the system is associated with a time-continuous state and a time-discontinuous control [174].*

3.2.2 The periodic problem

We now consider a variant of the previous Cauchy problem, where the initial condition must also satisfy the periodicity condition (3.2). Given $u \in L^2_{T_c}(0, T; \mathbb{R}^2)$, this problem reads:

Find $(X_0, X) \in \mathbb{R}^3 \times \mathcal{C}(0, T; \mathbb{R}^3)$ such that

$$\begin{cases} \dot{X}(t) &= A(u(t))X(t) + D, \quad t \in [0, T] \\ X(0) &= X_0 = X(T). \end{cases}$$

To prove the existence and uniqueness of a (weak) solution of this problem, we need the following result.

Lemma 3.1. *let $Z_0 \in \mathbb{R}^3$ and $Z(t) \in \mathcal{C}(0, T; \mathbb{R}^3)$ be the weak solution of (3.3) in the case $X_0 = Z_0$ and $D = 0$. For $t \in [0, T]$:*

$$\|Z(t)\|_2 \leq e^{-\min(\Gamma, \gamma)t} \|Z_0\|_2. \quad (3.10)$$

Proof The result will be obtained by a Gronwall-type estimate. Let $t \in [0, T]$. As a weak solution of (3.3), the function Z is almost everywhere differentiable and a direct calculation gives

$$\frac{d\|Z(t)\|_2^2}{dt} = 2\langle Z(t), A(u(t))Z(t) \rangle \leq -2\min(\Gamma, \gamma)\|Z(t)\|_2^2, \quad (3.11)$$

where we have used the fact that the symmetric part of $A(u(t))$ is diagonal, with negative coefficients. Defining $h(t) := \frac{d\|Z(t)\|_2^2}{dt} + 2\min(\Gamma, \gamma)\|Z(t)\|_2^2$ and multiplying both sides by $e^{2\min(\Gamma, \gamma)t}$, we obtain:

$$\frac{d(e^{2\min(\Gamma, \gamma)t}\|Z(t)\|_2^2)}{dt} = e^{2\min(\Gamma, \gamma)t} h(t),$$

which gives by integration over $[0, t]$

$$\|Z(t)\|_2^2 = e^{-2\min(\Gamma, \gamma)t}\|Z_0\|_2^2 + \int_0^t e^{2\min(\Gamma, \gamma)(s-t)} h(s) ds.$$

Because of (3.11), $h(t) \leq 0$ and the result follows. \square

We can now state an existence and uniqueness result in the periodic case.

Theorem 3.2. *There exists a unique couple $(X_0, X) \in \mathbb{R}^3 \times \mathcal{C}(0, T; \mathbb{R}^3)$ satisfying*

$$\begin{cases} X(t) &= X_0 + \int_0^t [A(u(s)) X(s) + D] ds, \\ X(T) &= X_0, \end{cases} \quad (3.12)$$

for all $t \in [0, T]$.

Proof Introduce the mapping $\Psi : \mathbb{R}^3 \rightarrow \mathbb{R}^3$ defined by

$$\Psi(X_0) := X(T),$$

where X is the weak solution of (3.3) obtained in Theorem 3.1.

Given $X_0^1 \in \mathbb{R}^3$ and $X_0^2 \in \mathbb{R}^3$, define $Z_0 = X_0^2 - X_0^1$ and $Z(t) = X^2(t) - X^1(t)$, where X^2 and X^1 are the weak solutions obtained by Theorem 3.1 with $X_0 = X_0^2$ and $X_0 = X_0^1$, respectively. Subtracting the corresponding weak representations (3.4), we see that Z satisfies the assumptions of Lemma 3.1 so that (3.10) holds. As a consequence,

$$\|X^2(T) - X^1(T)\|_2 \leq e^{-\min(\Gamma, \gamma)T} \|X_0^2 - X_0^1\|_2,$$

which implies that Ψ is a contraction. Applying Banach fixed-point theorem, it follows that there exists a unique $X_0 \in \mathbb{R}^3$ such that $\Psi(X_0) = X_0$. The corresponding weak solution X of (3.3) satisfies (3.12). \square

Remark 3.2. *Theorem 3.2 remains true if $D \in L^1(0, T; \mathbb{R}^3)$.*

We can actually bound X , as stated in the next lemma.

Chapter 3. Optimal control of Nuclear Magnetic Resonance Periodic Systems

Lemma 3.2. *Let $(X_0, X) \in \mathbb{R}^3 \times \mathcal{C}(0, T; \mathbb{R}^3)$ be the unique solution of (3.12) and $t \in [0, T]$. We have*

$$\|X(t)\|_2 \leq \frac{1}{\min(\Gamma, \gamma)} \|D\|_2. \quad (3.13)$$

Proof The first step of the proof is similar to the one of Lemma 3.1. As a weak solution of (3.3), the function X is almost everywhere differentiable and we have for $t \in [0, T]$,

$$\begin{aligned} \frac{d\|X(t)\|_2^2}{dt} &= 2\langle X(t), A(u(t))X(t) + D \rangle \\ &\leq -2\min(\Gamma, \gamma)\|X(t)\|_2^2 + 2\|X(t)\|_2\|D\|_2 \\ &\leq -2\min(\Gamma, \gamma)\|X(t)\|_2^2 + \varepsilon\|X(t)\|_2^2 + \frac{1}{\varepsilon}\|D\|_2^2, \end{aligned}$$

where $\varepsilon \in]0, 2\min(\Gamma, \gamma)[$. Multiplying both sides by $e^{(2\min(\Gamma, \gamma) - \varepsilon)t}$, we obtain:

$$\frac{d(e^{(2\min(\Gamma, \gamma) - \varepsilon)t}\|X(t)\|_2^2)}{dt} \leq e^{(2\min(\Gamma, \gamma) - \varepsilon)t} \frac{1}{\varepsilon}\|D\|_2^2, \quad (3.14)$$

which gives by integration over $[0, T]$

$$\|X(T)\|_2^2 \leq e^{(-2\min(\Gamma, \gamma) + \varepsilon)T}\|X_0\|_2^2 + \int_0^T e^{(2\min(\Gamma, \gamma) - \varepsilon)(s-T)} \frac{1}{\varepsilon}\|D\|_2^2 ds.$$

Since $X(T) = X_0$, we deduce

$$\|X_0\|_2^2 \leq \frac{1}{(2\min(\Gamma, \gamma) - \varepsilon)\varepsilon} \|D\|_2^2$$

We then set $\varepsilon = \min(\Gamma, \gamma)$ to get

$$\|X_0\|_2 \leq \frac{1}{\min(\Gamma, \gamma)} \|D\|_2. \quad (3.15)$$

Using again (3.14), we obtain by integration over $[0, t]$:

$$\|X(t)\|_2^2 \leq e^{-\min(\Gamma, \gamma)t}\|X_0\|_2^2 + \frac{1}{\min(\Gamma, \gamma)^2} (1 - e^{-\min(\Gamma, \gamma)t}) \|D\|_2^2.$$

Eq. (3.13) then follows by estimating $\|X_0\|_2$ using (3.15). \square

In the rest of this chapter, we note by $H_{per}^1(0, T; \mathbb{R}^3)$ a subspace of $\mathcal{C}(0, T; \mathbb{R}^3)$ defined as follows:

$$H_{per}^1(0, T; \mathbb{R}^3) := \{X \in H^1(0, T; \mathbb{R}^3) | X(0) = X(T)\}.$$

Corollary 3.1. *For every $u \in L^2_{T_c}(0, T; \mathbb{R}^2)$ and $X \in \mathcal{C}(0, T; \mathbb{R}^3)$ solution of (3.12), X is in $H^1_{per}(0, T; \mathbb{R}^3)$.*

Proof Because of (3.8) and the fact that $\phi(X) = X$, the solution X is well-defined. Moreover, it is almost everywhere differentiable and we have:

$$\dot{X}(t) = B \exp(tB)X_0 + (C(u(t))X(t) + D).$$

Since $X \in \mathcal{C}(0, T; \mathbb{R}^3)$ and $u \in L^2_{T_c}(0, T; \mathbb{R}^2)$, X and \dot{X} are in $L^2(0, T; \mathbb{R}^3)$. \square

3.3 Optimization Problem

In this section, we are interested here in presenting an optimal control problem [61, 13, 14, 68] that amounts to maximizing a functional. In this way, we define:

$$F(u) := \langle X(T_c) | O | X(T_c) \rangle - \alpha \|u\|^2_{L^2_{T_c}(0, T; \mathbb{R}^2)}, \quad (3.16)$$

where $X \in H^1_{per}(0, T; \mathbb{R}^3)$ is the solution of (3.12), $\alpha > 0$, $0 < T_c < T$ and O is a hermitian matrix of spectral radius λ_O . The optimal control problem we consider is:

Find u^ solving the maximization problem:*

$$\max_{u \in L^2_{T_c}(0, T; \mathbb{R}^2)} F(u), \quad (3.17)$$

In what follows, we prove the existence of a solution of this problem and obtain optimality conditions.

3.3.1 Maximizing sequence

Consider a maximizing sequence $(u^k)_{k \in \mathbb{N}}$ associated with (3.17) and $(X_0^k, X^k)_{k \in \mathbb{N}}$ the corresponding sequence of solutions of (3.12). Because of (3.13), we have

$$\langle X^k(T_c) | O | X^k(T_c) \rangle \leq \frac{\lambda_O}{\min(\Gamma, \gamma)^2} \|D\|^2_2,$$

so that if $\|u^k\|_{L^2(0, T; \mathbb{R}^2)} \rightarrow +\infty$, then $F(u^k) \rightarrow -\infty$. This contradicts the definition of $(u^k)_{k \in \mathbb{N}}$. As a consequence, we can extract a subsequence, that we still denote by $(u^k)_{k \in \mathbb{N}}$, that weakly converges in $L^2(0, T; \mathbb{R}^2)$ to some control u^∞ . Considering again (3.13), we see that $(X_0^k)_{k \in \mathbb{N}}$ is necessarily bounded, so that -up to a supplementary extraction- we can also assume that $(X_0^k)_{k \in \mathbb{N}}$ converges to some state X_0^∞ .

3.3.2 Existence of an optimum

We now prove that the sequence $(X^k)_{k \in \mathbb{N}}$ of weak solutions of (3.12) defined in the previous section actually strongly converges in $\mathcal{C}(0, T; \mathbb{R}^3)$.

Theorem 3.3. *We keep the previous notations. The sequence $(X^k)_{k \in \mathbb{N}}$ converges strongly in $\mathcal{C}(0, T; \mathbb{R}^3)$ to X^∞ , where X^∞ is the solution of (3.12) with $u = u^\infty$.*

Proof Consider the mapping:

$$\begin{aligned} \mathbb{R}^3 \times L_{T_c}^2(0, T; \mathbb{R}^2) &\rightarrow \mathcal{C}(0, T; \mathbb{R}^3) \\ \varphi : (X_0, u) &\mapsto X, \end{aligned}$$

where X is defined as the solution of (3.4) associated with X_0 . We have

$$\begin{aligned} X^\infty - X^k &= \varphi(X_0^\infty, u^\infty) - \varphi(X_0^k, u^k) \\ &= \varphi(X_0^\infty, u^\infty) - \varphi(X_0^\infty, u^k) \\ &\quad + \varphi(X_0^\infty, u^k) - \varphi(X_0^k, u^k). \end{aligned}$$

Let $\eta > 0$. We first consider the term $Z^k := \varphi(X_0^\infty, u^k) - \varphi(X_0^k, u^k)$. Subtracting the weak representations (3.4) corresponding to $\varphi(X_0^\infty, u^k)$ and $\varphi(X_0^k, u^k)$, we see that Z^k satisfies the assumptions of Lemma 3.1 so that (3.10) holds. As a consequence,

$$\|\varphi(X_0^\infty, u^k) - \varphi(X_0^k, u^k)\|_2 \leq e^{-\min(\Gamma, \gamma)T} \|X_0^\infty - X_0^k\|_2,$$

meaning that there exists k_1 , such that for all $k \geq k_1$ $\|\varphi(X_0^\infty, u^k) - \varphi(X_0^k, u^k)\|_2 \leq \frac{\eta}{2}$.

Let us now consider the term $W^k := \varphi(X_0^\infty, u^\infty) - \varphi(X_0^\infty, u^k)$. Following the reasoning in the proof of Theorem 3.1, we obtain the Duhamel formula for $t \in [0, T]$:

$$\begin{aligned} W^k(t) &= \int_0^t \exp((t-s)B) \left(C(u^k(s) - u^\infty(s)) \right) X^\infty(s) ds \\ &\quad + \int_0^t \exp((t-s)B) C(u^k(s)) W^k(s) ds, \end{aligned} \tag{3.18}$$

where B and $C(\cdot)$ have been defined in (3.5) and (3.6). Define $\widetilde{X}^k \in \mathcal{C}(0, T; \mathbb{R}^3)$ by $\widetilde{X}^k(t) := \int_0^t \exp(-sB) \left(C(u^k(s) - u^\infty(s)) \right) X^\infty(s) ds$.

We aim at showing that $(\widetilde{X}^k)_{k \in \mathbb{N}}$ converges strongly in $\mathcal{C}(0, T; \mathbb{R}^3)$ using the

compact embedding of $H^1(0, T; \mathbb{R})$ in $\mathcal{C}(0, T; \mathbb{R})$. According to the fundamental theorem of calculus $\widetilde{X}^k \in \mathcal{C}(0, T; \mathbb{R}^3)$, so that $\widetilde{X}^k \in L^2(0, T; \mathbb{R}^3)$. Moreover, this function is differentiable almost everywhere and we have:

$$\dot{\widetilde{X}}^k(t) = \exp(-tB) \left(C(u^k(t) - u^\infty(t)) \right) X^\infty(t). \quad (3.19)$$

As X^∞ and $t \mapsto \exp(-tB)$ are two bounded continuous functions on $[0, T]$ and $u^k - u^\infty \in L^2_{T_c}(0, T; \mathbb{R}^2)$, $\dot{\widetilde{X}}^k$ belongs to $L^2(0, T; \mathbb{R}^3)$. Thus, $\widetilde{X}^k \in H^1(0, T; \mathbb{R}^3)$.

Let us now show that \widetilde{X}^k converges weakly to 0 in $H^1(0, T; \mathbb{R})$. Given $U \in H^1(0, T; \mathbb{R}^3)$, we have:

$$\langle U, \widetilde{X}^k \rangle_{H^1(0, T; \mathbb{R}^3)} = \int_0^T \langle U(t), \widetilde{X}^k(t) \rangle_{\mathbb{R}^3} dt + \int_0^T \langle \dot{U}(t), \dot{\widetilde{X}}^k(t) \rangle_{\mathbb{R}^3} dt. \quad (3.20)$$

The first term in the right-hand side can be written as follows:

$$\int_0^T \langle U(t), \widetilde{X}^k(t) \rangle_{\mathbb{R}^3} dt = \int_0^T \langle \varphi(s), \dot{\widetilde{X}}^k(s) \rangle_{\mathbb{R}^3} ds$$

where $\varphi(s) := \int_s^T U(t) dt$ so that $\varphi \in L^\infty(0, T; \mathbb{R}^3) \subset L^2(0, T; \mathbb{R}^3)$. It follows then from (3.19) that both terms of the right-hand side of (3.20) consist in sums of integrals of products of functions in $L^2(0, T; \mathbb{R})$ with components of $u^k - u^\infty$. Since $u^k - u^\infty$ converges weakly to 0, the two terms converge to 0. As a consequence, $(\widetilde{X}^k)_{k \in \mathbb{N}}$ weakly converges to 0 in $H^1(0, T; \mathbb{R}^3)$. From Sobolev embedding $H^1(0, T; \mathbb{R}) \rightarrow \mathcal{C}(0, T; \mathbb{R})$ applied to the components of \widetilde{X}^k , we have

$$d_k := \sup_{t \in [0, T]} \left\| \exp(-tB) \widetilde{X}^k(t) \right\|_2 \rightarrow 0 \quad (3.21)$$

On the other hand, we can estimate the second integral of $W^k(t)$ in (3.18) by

$$\begin{aligned} \left\| \int_0^t \exp((t-s)B) C(u^k(s)) W^k(s) ds \right\|_2 &\leq \mu \int_0^t \left\| C(u^k(s)) W^k(s) \right\|_2 ds \\ &\leq \sqrt{T} \kappa \mu \|u^k\|_{L^2_{T_c}(0, T; \mathbb{R}^2)} \int_0^t \left\| W^k(s) \right\|_2 ds, \end{aligned}$$

where κ and μ has been introduced in (3.7) and (3.9), respectively. Summarizing these results, we get:

$$\|W^k(t)\|_2 \leq d_k + \sqrt{T} \kappa \|u^k\|_{L^2_{T_c}(0, T; \mathbb{R}^2)} \int_0^t \|W^k(s)\|_2 ds.$$

Chapter 3. Optimal control of Nuclear Magnetic Resonance Periodic Systems

Since $W^k(0) = 0$, Gronwall's inequality then gives $\forall t \in [0, T]$

$$\|W^k(t)\|_2 \leq d_k \exp(T^{\frac{3}{2}} \kappa \|u^k\|_{L^2_{T_c}(0, T; \mathbb{R}^2)}).$$

It follows from (3.21) that there exists k_2 , such that for all $k \geq k_2$, $\|\varphi(X_0^\infty, u^\infty) - \varphi(X_0^\infty, u^k)\|_2 \leq \frac{\eta}{2}$. This leads to

$$\|X^\infty(t) - X^k(t)\|_2 \leq \eta.$$

Hence the result. \square

We can now prove the existence of solution of (3.17).

Theorem 3.4. *There exists a solution $u \in L^2_{T_c}(0, T; \mathbb{R}^2)$ of Problem (3.17).*

Proof We denote by $(u^k)_{k \in \mathbb{N}}$ and $(X^k)_{k \in \mathbb{N}}$ the sequences introduced in Section 3.3.1. Because of Theorem 3.3, $\lim_{k \rightarrow \infty} X^k(T_c) = X^\infty(T_c)$ strongly in $\mathcal{C}(0, T; \mathbb{R}^3)$. We have

$$\begin{aligned} F(u^\infty) &= \langle X^\infty(T_c) | O | X^\infty(T_c) \rangle - \alpha \|u^\infty\|_{L^2_{T_c}(0, T; \mathbb{R}^2)}^2, \\ &\geq \lim_{k \rightarrow \infty} \langle X^k(T_c) | O | X^k(T_c) \rangle \\ &\quad - \alpha \limsup_{k \rightarrow \infty} \|u^k\|_{L^2_{T_c}(0, T; \mathbb{R}^2)}^2 \\ &= \limsup_{k \rightarrow \infty} F(u^k), \end{aligned}$$

where we have used the lower-semicontinuity of the L^2 -norm. Since $(u^k)_{k \in \mathbb{N}}$ is a maximizing sequence, we have proved that u^∞ is a solution of (3.17). The result follows. \square

3.3.3 Optimality system

We finally characterize an optimum by means of an optimality system. The corresponding Euler-Lagrange equations are given in the next theorem.

Theorem 3.5. *Let u be a solution of Problem (3.17), and $X \in H^1_{per}(0, T; \mathbb{R}^3)$ the corresponding solution of (3.12). Then, there exists $Y \in L^2(0, T; \mathbb{R}^3)$ and continuous everywhere except T_c such that:*

$$\begin{cases} \dot{X}(t) &= A(u(t)) X(t) + D \\ \dot{Y}(t) &= -A^\top(u(t)) Y(t) \\ Y(T_c^+) &= Y(T_c^-) - 2OX(T_c) \\ Y(t)^\top \frac{dA}{du}(u(t)) X(t) &= 2\alpha u(t). \end{cases} \quad (3.22)$$

Proof We start by introducing $K : H_{per}^1(0, T; \mathbb{R}^3) \times L_{T_c}^2(0, T; \mathbb{R}^2) \rightarrow L^2(0, T; \mathbb{R}^3)$ defined by:

$$(X, u) \mapsto A(u(\cdot))X(\cdot) + D - \dot{X}(\cdot),$$

so that $K(X, u) = 0$ is equivalent to (3.12). Let us show that F and K are Fréchet-differentiable and the linearization $\nabla K(v)$ is surjective [58] for every $v = (X, u) \in H_{per}^1(0, T; \mathbb{R}^3) \times L_{T_c}^2(0, T; \mathbb{R}^2)$. First, let recall that $H^1(0, T; \mathbb{R}^3)$ is continuously embedded into $\mathcal{C}(0, T; \mathbb{R}^3)$ so that there exists an embedding constant $c_1 > 0$ satisfying:

$$\|\phi\|_{L^\infty(0, T; \mathbb{R}^3)} \leq c_1 \|\phi\|_{H_{per}^1(0, T; \mathbb{R}^3)}.$$

Let $v = (X, u)$ and $h_v = (h_X, h_u)$ belong to $H_{per}^1(0, T; \mathbb{R}^3) \times L_{T_c}^2(0, T; \mathbb{R}^2)$. We start by the function F .

Note that

$$\begin{aligned} F(v + h_v) - F(v) - 2\langle X(T_c) | O | h_X(T_c) \rangle - 2\alpha \langle u, h_u \rangle_{L^2(0, T; \mathbb{R}^2)} \\ = \langle h_X(T_c) | O | h_X(T_c) \rangle - \alpha \|h_u\|_{L_{T_c}^2(0, T; \mathbb{R}^2)}^2, \end{aligned}$$

which leads to

$$\begin{aligned} |F(v + h_v) - F(v) - 2\langle X(T_c) | O | h_X(T_c) \rangle - 2\alpha \langle u, h_u \rangle_{L^2(0, T; \mathbb{R}^2)}| \\ \leq \lambda_O \|h_X(T_c)\|_2^2 + \alpha \|h_u\|_{L_{T_c}^2(0, T; \mathbb{R}^2)}^2 \\ \leq \lambda_O c_1 \|h_X\|_{H_{per}^1(0, T; \mathbb{R}^3)}^2 + \alpha \|h_u\|_{L_{T_c}^2(0, T; \mathbb{R}^2)}^2 \\ \leq c_2 \left(\|h_X\|_{H_{per}^1(0, T; \mathbb{R}^3)}^2 + \|h_u\|_{L_{T_c}^2(0, T; \mathbb{R}^2)}^2 \right) \\ = c_2 \|h_v\|_{H_{per}^1(0, T; \mathbb{R}^3) \times L_{T_c}^2(0, T; \mathbb{R}^2)}^2 \rightarrow 0, \end{aligned}$$

where $c_2 = \lambda_O c_1 + \alpha$. Thus, F is Fréchet-differentiable and its Fréchet-derivative $\nabla F(v)$ is:

$$\nabla F(v)(h_v) = 2\langle X(T_c) | O | h_X(T_c) \rangle - 2\alpha \langle u, h_u \rangle_{L^2(0, T; \mathbb{R}^2)}$$

Similarly, we prove that the Fréchet-derivative of the function K satisfies

$$\nabla K(v)(h_v) = A(u(\cdot))h_X(\cdot) + C(h_u(\cdot))X(\cdot) - \dot{h}_X(\cdot).$$

We now prove the surjectivity of the function $\nabla K(v)$ for every $v = (X, u) \in H_{per}^1(0, T; \mathbb{R}^3) \times L_{T_c}^2(0, T; \mathbb{R}^2)$. Let $g \in L^2(0, T; \mathbb{R}^3)$ be arbitrary. Then, $\nabla K(X, u)(h_X, h_u) = g$ is equivalent to:

$$\dot{h}_X = A(u(\cdot))h_X + A(h_u(\cdot))X - g.$$

Chapter 3. Optimal control of Nuclear Magnetic Resonance Periodic Systems

Using Remark 3.2 and Corollary 3.1, we see that there exists $h_X \in H_{per}^1(0, T; \mathbb{R}^3)$ satisfying the latter equation with $h_u = 0$. As a consequence, $\nabla K(v)$ is surjective.

We have assumed that u is a solution of (3.17) and $X \in H_{per}^1(0, T; \mathbb{R}^3)$ satisfies (3.12). Finally, thanks to the surjectivity (see [58], Section 1.3) of $\nabla K(X, u)$ there exists an adjoint vector $Y \in L^2(0, T; \mathbb{R}^3)$ such that for δX in $H_{per}^1(0, T; \mathbb{R}^3)$, we get the usual Karush-Kuhn-Tucker condition:

$$\nabla F(u)(\delta X, 0) = \int_0^T \langle Y(t), \nabla K(X, u)(\delta X, 0) \rangle$$

meaning that

$$\int_0^T \langle Y(t), \delta \dot{X}(t) \rangle dt = 2\langle X(T_c) | O | \delta X(T_c) \rangle + \int_0^T \langle A(u(t))^T Y(t), \delta X(t) \rangle dt.$$

Consider now a function ϕ such that $\dot{\phi}(t) = -A(u(t))^T Y(t)$ and $\phi(T_c^-) - \phi(T_c^+) = 2OX(T_c)$. By integrating $\langle \phi(t), \delta \dot{X}(t) \rangle$ on the interval $[T_c^+, T_c^-]$ (in the periodic sense), we obtain

$$\int_{T_c^+}^{T_c^-} \langle \phi(t), \delta \dot{X}(t) \rangle dt = \langle \phi(T_c^-) - \phi(T_c^+), \delta X(T_c) \rangle - \int_{T_c^+}^{T_c^-} \langle \dot{\phi}(t), \delta X(t) \rangle dt.$$

By identification, we conclude that $Y = \phi$. Hence the equation on Y . \square

3.4 Numerical results

We finally investigate here some results about the L^2 -norm of the optimal field for different values of penalty parameter α and time T_c , respectively. To numerically solve the evolution equation in X we use a Crank-Nicholson time-discretization scheme, with 50 steps in $[0, T_c]$. To compute the optimal controls u , we apply the gradient method described in [60]. The values of the parameters we consider are also taken from the latter. The implementation is carried out with Octave [59].

First test : We consider a range of values α in the interval $[10^{-2}, 4]$ and we solve iteratively the optimization problem for increasing values of α ; the previous optimal field is used as a guess field to initialize the next optimization. Figure 3.2 (left) shows that the L^2 -norm of the optimal control field decrease with α . We observe a polynomial convergence of the norm of the control with respect to α , more precisely, we find that $\|u\|_{L^2(0, T; \mathbb{R}^2)} = \frac{a}{\alpha}$ asymptotically for some $a > 0$.

Second test : We consider the same procedure as in the previous test, and solve the optimization problem for various values of T_c . More precisely, we consider values of T_c in the interval $[10^{-4}, 10^{-2}]$. Figure 3.2 (right) shows that the norm of control field increases with T_c . We observe a relation of the form:

$$\log(\|u\|_{L^2(0,T;\mathbb{R}^2)}) = a \log(T_c) + b,$$

where the coefficients a and b can be determined with the blue line. In this test, we observe that $a \approx 0.5$.

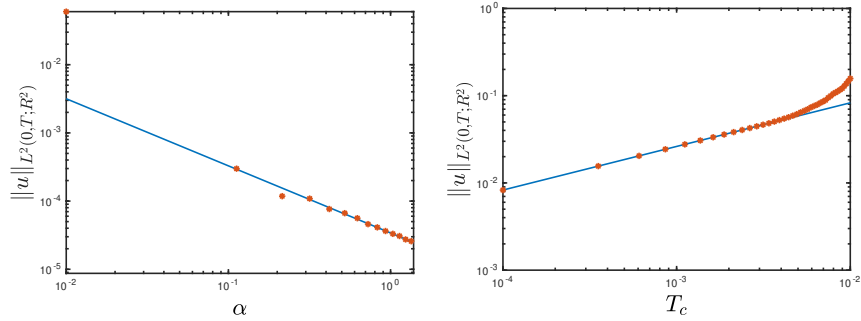


Figure 3.2: Evolution of the $\|u\|_{L^2(0,T;\mathbb{R}^2)}$ (Red), for $\omega = 0$, $\Gamma = 1.8$ and $\gamma = 1$, with respect to α (Left, $T_c = 10^{-2}$ and $T = 1 + T_c$). and to T_c (Right, $\alpha = 10^{-5}$ and $T = 1 + T_c$).

Chapter 4

Optimal periodic control of spin systems: Application to the maximization of the signal to noise ratio per unit time

4.1 Introduction

Optimality with respect to a given criterion is vital in many applications, but it presents a complexity that requires a lot of ingenuity to provide a solution [62, 63, 64, 65]. Quantum control [66, 67, 68, 69, 70, 72, 71] is no exception to this rule and many efforts have been made recently in this domain to develop tools and methods in order to conduct a systematic analysis of optimal control problems (see, e.g., some recent reviews [73, 74, 75, 76] and references therein). In quantum control, there is a genuine desire to solve concrete questions and contribute beyond the purely theoretical analysis [73, 74]. Different numerical iterative algorithms have been proposed to solve the optimal equations [77, 79, 80, 81, 82, 83] in a variety of domains [73, 74] extending from photochemistry [66, 67], Nuclear Magnetic Resonance (NMR) [84, 85, 86] and Magnetic Resonance Imaging (MRI) [87, 88, 89, 90, 91, 92, 93, 94, 95, 96], and in quantum information science [73]. Several modifications of standard algorithms have been proposed to account for experimental limitations and uncertainties [97, 98, 79, 84, 99, 100, 101, 85, 86, 102, 103], showing their flexibility and the possibility to adapt them to new classes of control problems.

We propose in this work to investigate a new issue in quantum control,

namely the optimal control of periodic processes. The originality and the difficulty of this optimization problem come from the fact that the initial and final states of the dynamical system are not known, but have to be determined together with the control field to maximize a figure of merit. The optimal control of periodic processes is well-established in mathematics [104, 108] and have been applied in different domains, such as robotics or biology [109], to mention a few. To the best of our knowledge, this issue has not been explored in quantum control. As an illustrative example, we consider in this paper a question of fundamental and practical interest in NMR and MRI [110, 111, 112, 113], namely the maximization of the signal-to-noise ratio per unit time (SNR) of spin 1/2 particles. The SNR is practically enhanced in spin systems by using a multitude of identical cycles. In this periodic regime, the SNR increases as the square root of the number of scans. Each elementary block is composed of a detection time and of a control period where the spin is subjected to a radio-frequency magnetic pulse, this latter being used to guarantee the periodic character of the overall process. A first solution to this problem was established in the sixties by R. Ernst and his co-workers [113]. In this protocol, the control law is made of a δ - pulse, characterized by a specific rotation angle, called the *Ernst angle solution*. This pulse sequence is nowadays currently used in magnetic resonance spectroscopy and imaging. Related control procedures, known as SSFP (Steady State Free Precession) have been also intensively investigated in the literature for medical applications (See Ref. [117, 118, 119, 120, 121, 114, 115, 116], to mention a few). Some of us have revisited recently the question of the Ernst angle procedure by applying the tools of geometric control theory [64, 65]. In [122], it is shown in the general case of unbounded controls which also includes finite-amplitude shaped pulses (only δ - pulses were considered in [113]) that the Ernst angle solution is the optimal solution of the control problem aiming at maximizing the SNR of a spin. This analysis was generalized in [123] to spin dynamics in presence of radiation damping effects and crusher gradients.

The maximization of the SNR is used in this work as a motivation to extend the scope of quantum optimal algorithms to periodic dynamics. The periodicity constraint is enforced through the introduction of a Lagrange multiplier. We outline the principles of a gradient optimization procedure in this generalized framework. We investigate numerically the optimization of the SNR. For short control times, we show that the algorithm converges to the Ernst angle solution in the case of a homogeneous spin ensemble. For longer control durations, we observe that the optimal solution heavily depends on

Chapter 4. Optimal periodic control of spin systems: Application to the maximization of the signal to noise ratio per unit time

the guess field used to initialize the algorithm. We describe geometrically the different solutions. Finally, we consider the case of an inhomogeneous ensemble of spins with several offsets. For a fixed control time, we analyze the different periodic trajectories and the maximum achievable SNR.

The chapter is organized as follows. Section 4.2 introduces the model system and gives a complete description of the optimal control problem. Section 4.3 outlines the principles of the new optimization procedure. A special attention is paid to the difference with a standard iterative algorithm. Section 4.4 is dedicated to the numerical implementation of the algorithm. The numerical results are presented and discussed in Section 4.5 for homogeneous and inhomogeneous spin ensembles, respectively. Conclusion and prospective views are given in Section 4.6. Some analytical computations about the Ernst angle solution are reported in Appendix A.

4.2 Description of the control process for the maximization of the SNR

We consider an inhomogeneous ensemble of uncoupled spin 1/2 particles with different offset terms [112]. In a given rotating frame, the equation of motion for the spin ensemble reads:

$$\begin{pmatrix} \dot{x}^{(\omega)} \\ \dot{y}^{(\omega)} \\ \dot{z}^{(\omega)} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -2\pi x^{(\omega)}/T_2 \\ -2\pi y^{(\omega)}/T_2 \\ 2\pi(1 - z^{(\omega)})/T_1 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} -\omega y^{(\omega)} + \omega_y(t)z^{(\omega)} \\ \omega x^{(\omega)} - \omega_x(t)z^{(\omega)} \\ \omega_x(t)y^{(\omega)} - \omega_y(t)x^{(\omega)} \end{pmatrix},$$

where the Bloch vector $X := (x^{(\omega)}, y^{(\omega)}, z^{(\omega)})^\top$ represents the state of an element of the ensemble, T_1 and T_2 are the two relaxation parameters, ω the offset term and $\omega_x(t)$, $\omega_y(t)$ the two control fields. We use normalized coordinates so that the Bloch ball is defined by $x^2 + y^2 + z^2 \leq 1$ for each spin. Normalizing the time by the detection time T_d (see below for the definition) and setting $\gamma = 2\pi T_d/T_1$ and $\Gamma = 2\pi T_d/T_2$, we arrive at:

$$\dot{X} = A(\vec{\omega}) X + D \quad (4.1)$$

where $D := (0, 0, \gamma)^\top$ and $A(\vec{\omega})$ is a 3×3 - matrix:

$$A(\vec{\omega}) := \begin{pmatrix} -\Gamma & -\omega & \omega_y(t) \\ \omega & -\Gamma & -\omega_x(t) \\ -\omega_y(t) & \omega_x(t) & -\gamma \end{pmatrix},$$

with $\vec{\omega}(t) = (\omega_x(t), \omega_y(t))$. Note that the matrix A leads to a decrease of the modulus of the Bloch vector, while the vector D can enhance this modulus. The optimization of the SNR per unit time is described by a simple scenario (see the schematic description in Fig. 4.1 and Ref. [122, 123] for details). The point $M^{(\omega)}$ reached at the end of the control process is the measurement point for the spin of offset ω . The corresponding spin has then a free evolution from this point to the steady state $S^{(\omega)}$ where the pulse sequence starts. The times T_d and T_c denote the detection time (fixed by the experimental setup) and the control time, respectively. The total time during which a series of identical

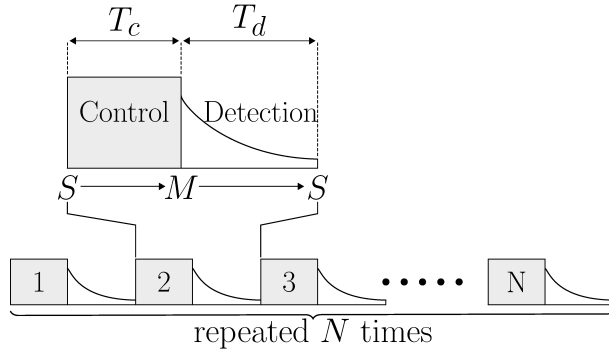


Figure 4.1: Schematic representation of the cyclic process used in the maximization of the SNR.

experiments are made is fixed. The total number N of experiments is then given by $T = N(T_c + T_d)$. The optimization problem is defined through the introduction of a figure of merit:

$$R = \frac{N}{\sqrt{N}} \sqrt{[\sum_{\omega} x^{(\omega)}(T_c)]^2 + [\sum_{\omega} y^{(\omega)}(T_c)]^2}, \quad (4.2)$$

where $[\sum_{\omega} x^{(\omega)}(T_c)]^2 + [\sum_{\omega} y^{(\omega)}(T_c)]^2$ is the square modulus of the strength of the signal (transverse magnetization) at time T_c . We consider a white noise, which leads to the \sqrt{N} factor in R . Using the relation $N = T/(T_c + T_d)$ and setting $T_d = 1$, we define the normalized figure of merit:

$$F_{\text{opt}} = \frac{1}{\sqrt{1 + T_c}} \sqrt{[\sum_{\omega} x^{(\omega)}(T_c)]^2 + [\sum_{\omega} y^{(\omega)}(T_c)]^2}. \quad (4.3)$$

This figure of merit F_{opt} will be used in the numerical simulations of Sec. 4.5.

4.3 Optimal periodic control of spin systems

4.3.1 Optimal control algorithm

In this paragraph, we generalize the optimal control algorithm GRAPE to periodic dynamics [77]. To simplify the presentation of the optimization procedure, we specifically consider the case of the maximization of the SNR of a single spin, but the algorithm can be applied to any periodic control of quantum systems. We focus here on the general characteristics of the algorithm, a numerical implementation is described in Sec. 4.4.

We describe the dynamics of the model system on bounded intervals $([0, T_c], [T_c, T_c + T_d], \dots)$, keeping in mind that all the variables are $(T_c + T_d)$ -periodic. Since the dynamics are governed by two different regimes over a period, we split the propagation into the intervals $[0, T_c]$ and $[T_c, T_c + T_d]$:

$$\begin{cases} X(T_c) &= U_c X(0) + E_c \\ X(0) &= U_d X(T_c) + E_d, \end{cases} \quad (4.4)$$

where the indices c and d stand respectively for the controlled and detection periods, U_c and U_d (resp. E_c and E_d) denote the linear (resp. affine) parts of the propagators over the intervals $[0, T_c]$ and $[T_c, T_c + T_d]$. Setting $W := U_c U_d$ and $L := U_c E_d + E_c$, we find that the periodicity constraint on X reads:

$$X(T_c) = W X(T_c) + L, \quad (4.5)$$

that is

$$X(T_c) = (\mathbf{1} - W)^{-1} L, \quad (4.6)$$

in the case where $\mathbf{1} - W$ is invertible, $\mathbf{1}$ being the 3×3 identity matrix. The invertibility of $\mathbf{1} - W$, which is connected to the existence of periodic trajectories, is examined in Sec. 4.3.2.

The optimal control problem is defined through the figure of merit $F(X(T_c)) = (1 + T_c) F_{\text{opt}}^2$. To take into account the different constraints on the dynamics, we use the method of Lagrange multipliers by introducing the Lagrangian of the problem [63]:

$$\tilde{F} = F(X(T_c)) + \int_{T_c}^{2T_c + T_d} Y(t)^\dagger (A(\vec{\omega})X(t) + D - \dot{X}(t)) dt, \quad (4.7)$$

where $Y(t)$ is the $(T_c + T_d)$ -periodic adjoint state of the system at time t . Differentiating \tilde{F} with respect to its variables, we obtain the necessary

conditions for $\vec{\omega}$ and $X(T_c)$ to be optimal, namely:

$$\begin{cases} F'(X(T_c)) - (Y(T_c^-) - Y(T_c^+)) = 0 \\ \dot{Y}(t) + A(\vec{\omega})^\top Y(t) = 0 \\ Y^\top \partial_{\vec{\omega}} A(\vec{\omega}) X = 0, \end{cases} \quad (4.8)$$

completed by Eq. (4.1), where $F'(X(T_c)) = \nabla_{X(T_c)} F$. Since F explicitly depends on $X(T_c)$, note that Y has a jump at time T_c , i.e. $Y(T_c^-) \neq Y(T_c^+)$. Using the fact that $Y(T_c^+) = U_d^\top Y(T_c + T_d^-)$ and $Y(T_c + T_d^+) = U_c^\top Y(T_c^-)$, we then obtain:

$$Y(T_c^+) = U_d^\top U_c^\top Y(T_c^-) = W^\top Y(T_c^-).$$

Combining the latter with Eq. (4.8), we get:

$$(\mathbf{1} - W^\top)Y(T_c^-) = F'(X(T_c)).$$

If $\mathbf{1} - W^\top$ is invertible, we deduce that the condition at time $t = T_c^-$ for the adjoint state is:

$$Y(T_c^-) = (\mathbf{1} - W^\top)^{-1} F'(X(T_c)). \quad (4.9)$$

The optimality system (4.1) and (4.8) can be solved by using Eq. (4.6) and (4.9) and the following iterative approach similar in spirit to a standard gradient algorithm. The iteration is initialized by a guess field $\vec{\omega}_0(t)$. At each step, $X(T_c)$ is computed using Eq. (4.6) which then enables to find a solution of Eq. (4.1). Then we deduce the state $Y(T_c^-)$ from Eq. (4.9) which allows to compute the solution of Eq. (4.8). The correction to the control field is finally determined using $\nabla_{\vec{\omega}_k} \tilde{F}$. The detailed numerical procedure is described in Sec. 4.4 in a time-discretized setting.

4.3.2 Proof of the existence of periodic trajectories

The existence of periodic trajectories for any control field $\vec{\omega}(t)$ and any offset ω of the Bloch equation (4.1), is proven in chapter 3 using the Theorem 3.2.

As a consequence of this result, we observe that the periodic dynamical model introduced in this study is well-posed in a very general mathematical setting, which includes the case of an ensemble of inhomogeneous spins.

4.4 Discrete computation

We now repeat the previous computation in a time-discretized setting. This corresponds to a standard experimental framework in NMR and MRI where the used magnetic fields are piecewise constant fields [111, 112]. We introduce the time discretization parameters K and dT satisfying $K dT = T_c$ and a subdivision of the time interval $[0, T_c]$ given by the sequence $(t_k)_{k=1, \dots, K+1}$, $t_k = kdT$. Equation (4.1) is discretized using a Crank-Nicholson scheme, corresponding to the iteration:

$$\frac{X_{k+1} - X_k}{dT} = A(\vec{\omega}_k) \frac{X_{k+1} + X_k}{2} + D, \quad k = 1, \dots, K. \quad (4.10)$$

where X_k , $A(\vec{\omega}_k)$ and $\vec{\omega}_k$ stand respectively for $X(kdT)$, $A(\vec{\omega}(kdT))$ and $\vec{\omega}(kdT)$. Introducing the matrices $B_k := \mathbf{1} - \frac{dT}{2} A(\vec{\omega}_k)$, $\tilde{B}_k := \mathbf{1} + \frac{dT}{2} A(\vec{\omega}_k)$, $U_k := B_k^{-1} \tilde{B}_k$ and the vector $E_k := dT B_k^{-1} D$, Eq. (4.10) becomes:

$$X_{k+1} = U_k X_k + E_k. \quad (4.11)$$

For a given control field $\vec{\omega}(t)$ acting on $[0, T_c]$ and the initial state X_1 , we obtain:

$$X_{k+1} = U_k U_{k-1} \cdots U_1 X_1 + \sum_{n=1}^{k-1} \left(\prod_{j=n+1}^k U_j \right) E_n + E_k. \quad (4.12)$$

Note that, up to a diagonalization, U_d and E_d can be exactly computed. The diagonalization of $A(0)$ gives $A(0) = P D_1 P^\top$, which leads to $U_d = P \exp(T_d D_1) P^\top$ and $E_c = P \exp((T_c + T_d - s) D_1 P^\top) D ds$. We therefore keep them at the discrete level, and the discrete expressions of Eq. (4.4) are given by:

$$\begin{cases} X_{K+1} &= U_c^{dT} X_1 + E_c^{dT} \\ X_1 &= U_d X_{K+1} + E_d, \end{cases} \quad (4.13)$$

where U_c^{dT} and E_c^{dT} can be expressed as:

$$\begin{cases} U_c^{dT} &:= U_K U_{K-1} \cdots U_1 \\ E_c^{dT} &:= \sum_{k=1}^{K-1} \left(\prod_{j=k+1}^K U_j \right) E_k + E_K. \end{cases} \quad (4.14)$$

Introducing $W^{dT} := U_c^{dT} U_d$ and $L^{dT} := U_c^{dT} E_d + E_c^{dT}$, we deduce that Eq. (4.13) lead to

$$X_{K+1} = W^{dT} X_{K+1} + L^{dT}. \quad (4.15)$$

It follows that a solution of Eq. (4.15) can be written as:

$$X_{K+1} = (\mathbf{1} - W^{dT})^{-1} L^{dT}, \quad (4.16)$$

which is a time-discretized version of Eq. (4.5). In this setting, the Lagrangian can be expressed as:

$$\tilde{F}^{dT} = F(X_{K+1}) - \sum_{k=K}^{2K-1} Y_{k+1}^\top (X_{k+1} - U_k X_k - E_k). \quad (4.17)$$

The necessary conditions for $\vec{\omega}$ to be optimal are given by Eq. (4.11), as well as by:

$$F'(X_{K+1}) - Y_{K+1} + U_{K+1}^\top Y_{K+2} = 0 \quad (4.18)$$

and, for $k = 1, \dots, K$:

$$\begin{cases} Y_k - U_k^\top Y_{k+1} = 0 \\ \nabla_{\vec{\omega}_k} F_{dT} = 0, \end{cases} \quad (4.19)$$

with

$$\nabla_{\vec{\omega}_k} F_{dT} = Y_{k+1}^\top \partial_{\vec{\omega}_k} U_k X_k. \quad (4.20)$$

Note that Y_{K+1} and $U_{K+1}^\top Y_{K+2}$ correspond respectively to $Y(T_c^-)$ and $Y(T_c^+)$ in the continuous setting. As $Y_1 = (U_c^{dT})^\top Y_{K+1}$ and $U_{K+1}^\top Y_{K+2} = U_d^\top Y_1$, we deduce:

$$U_{K+1}^\top Y_{K+2} = U_d^\top (U_c^{dT})^\top Y_{K+1} = (W^{dT})^\top Y_{K+1}.$$

Combining the latter with Eq. (4.18) leads to

$$(\mathbf{1} - (W^{dT})^\top) Y_{K+1} = F'(X_{K+1}).$$

Assuming once again that $\mathbf{1} - (W^{dT})^\top$ is invertible (the invertibility can be shown by adapting the reasoning presented in Sec. 4.3.2 to the discrete setting), we obtain Y_{K+1} from:

$$Y_{K+1} = (\mathbf{1} - (W^{dT})^\top)^{-1} F'(X_{K+1}). \quad (4.21)$$

which corresponds to a discrete version of Eq. (4.9). Using Eq. (4.20), we propose the following gradient-type algorithm, that solves iteratively Eq. (4.19).

Algorithm: Given $\vec{\omega}^{(0)}$ the initial control field, we calculate the operator $W^{dT} = U_K U_{K-1} \cdots U_1 U_d$. Let us assume that $\vec{\omega}^{(\ell)}$ is known at iteration ℓ , the control $\vec{\omega}^{(\ell+1)}$ is computed by the following procedure:

1. Compute $X_{K+1}^{(\ell)}$ by Eq. (4.16).

Chapter 4. Optimal periodic control of spin systems: Application to the maximization of the signal to noise ratio per unit time

2. Compute $Y_{K+1}^{(\ell)}$ according to Eq. (4.21).
3. Propagate forward $X^{(\ell)}$ using Eq. (4.11) and $X_{K+1}^{(\ell)}$.
4. Propagate backward $Y^{(\ell)}$ from $Y_{K+1}^{(\ell)}$ using Eq. (4.19).
5. Compute the gradient $\nabla_{\vec{\omega}^{(\ell)}} F_{dT}$ according to Eq. (4.20), and the optimal ascent step ρ . Then, update the control field as follows:

$$\vec{\omega}^{(\ell+1)} = \vec{\omega}^{(\ell)} + \rho \nabla_{\vec{\omega}^{(\ell)}} F_{dT}.$$

Numerical results are presented in Sec. 4.4 based on the implementation of the Crank-Nicholson approach (4.11). In these numerical tests, different values of T_c are used. In order to control the accuracy of the numerical evolution of the trajectory of the state \vec{X} , we consider an adaptive time step in which the parameters dT and K are fixed with respect to the maximum amplitude of the control field $\vec{\omega}^*(t)$. In this way, we define

$$dT = \frac{\Delta T}{\max_t |\vec{\omega}^*(t)|},$$

and

$$K = \frac{T_c + dT}{dT}.$$

Step 1 corresponds to the implementation of this discretization technique.

The control is updated in Step 5 where an optimal step gradient iteration is used. One could alternatively consider other optimization methods (optimized gradient method or pseudo-Newton methods, conjugate gradient method, \dots). In the examples discussed below, the choice of a gradient method with optimal step proved to be the most efficient from a numerical point of view, in terms of number of iterations and computational time.

4.5 Numerical results

4.5.1 Control of a homogeneous ensemble

This section is dedicated to the numerical maximization of the SNR in the case of a homogeneous spin ensemble.

The Ernst angle solution is the time-optimal solution maximizing the SNR [113, 122]. In this paragraph, we use this control problem as a benchmark to evaluate the efficiency of the optimization algorithm. Without loss

of generality, we can assume that the offset term is zero and that $\omega_y(t) = 0$, the spin trajectory belonging to the $(y - z)$ - plane. We first recall the definition of the Ernst angle solution. For sake of completeness, the derivation of this control protocol is given in Appendix A. In this approach, the pulse sequence is only made of a δ - pulse characterized by the Ernst angle θ_E :

$$\cos \theta_E = \frac{e^{-\gamma} + e^{-\Gamma}}{1 + e^{-\Gamma-\gamma}}. \quad (4.22)$$

The dissipation effect is neglected during the control time. The coordinates of the corresponding measurement point M are:

$$z_m^{(E)} = \frac{1}{1 + e^\gamma}; \quad y_m^{(E)} = \frac{e^\Gamma}{1 + e^\gamma} \sqrt{\frac{e^{2\gamma} - 1}{e^{2\Gamma} - 1}}. \quad (4.23)$$

The figure of merit F_E is then given by $F_E = y_m^{(E)}$ since the detection time T_d is set to 1 and the control time T_c is zero for an ideal δ - pulse.

We start the analysis of the optimal control algorithm by a general study of the maximum SNR that can be achieved for short control durations. As can be seen in Fig. 4.2, we first verify that the algorithm converges to the Ernst angle solution when the control duration goes to 0. We observe that the convergence is almost linear as a function of T_c . Figure 4.3 represents the different positions of the steady state and the measurement point during the optimization process. Figure 4.3 clearly shows that the two points converge very quickly towards the points of the Ernst angle solution.

In a second series of numerical tests, we consider a range of times T_c in the interval $[10^{-4}, 7.3 \times 10^{-4}]$. Several optimizations are performed for increasing control times, in which the previous optimal field is used as a guess field to initialize the next optimization. A coarse and a fine discretizations of the time interval $[10^{-4}, 7.3 \times 10^{-4}]$ are used, with 4 and 13 points, respectively. The results of the optimization process are given in Fig. 4.4. A smooth evolution is observed in the case of a fine discretization, while an abrupt change occurs for the coarse one. The different control mechanisms can be described from the analysis of the uniform norm of the optimal field, $\|\omega\|_\infty = \max_{t \in [0, T_c]} |\omega_x(t)|$. Figure 4.4 shows that this norm is almost constant for the coarse case, which leads to different trajectories as can be seen in Fig. 4.5 (See also the movies in the Supplemental Material [124]). For times longer than 3×10^{-4} , the steady state and the measurement points change and the system follows more complex trajectories. For the fine case, the figure of merit changes very little from one control time to the next. For all the possible values of T_c , we observe that the optimal solution is very similar to the one for $T_c = 10^{-4}$.

Chapter 4. Optimal periodic control of spin systems: Application to the maximization of the signal to noise ratio per unit time

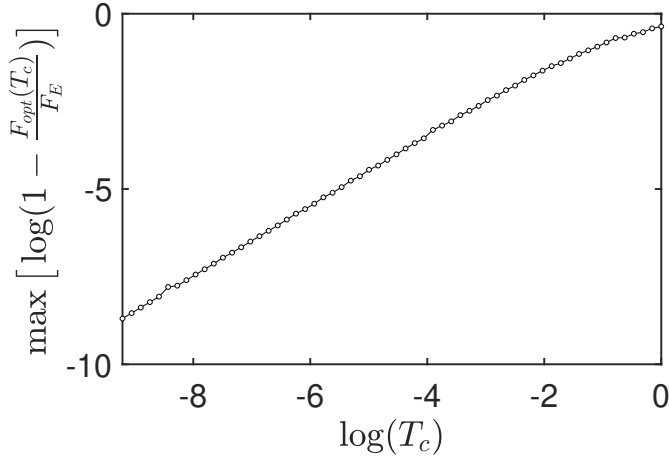


Figure 4.2: (Color online) Evolution of the figure of merit $F_{opt}(T_c)$ for different control times T_c (open circles). The relaxation parameters are set to $\Gamma = 4$ and $\gamma = 2$. The maximum is taken over 20 realizations of the algorithm for each time T_c with different random trial fields. Dimensionless units are used.

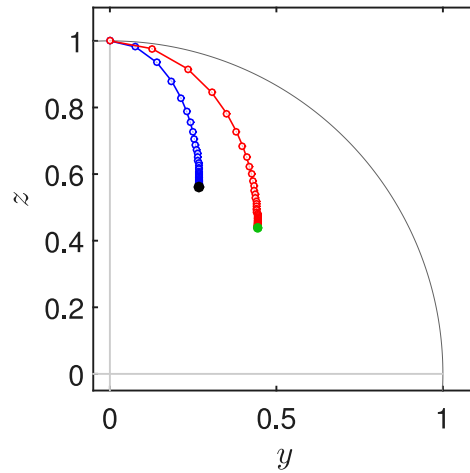


Figure 4.3: (Color online) Evolution of the position of the steady state S (blue or dark gray) and the measurement point M (red or light gray) during the optimization process (the points of the first 25 iterations of the algorithm are plotted). Since the guess field is a zero control, the initial position of S and M corresponds to the north pole of Bloch sphere of coordinates $(0,1)$. The S and the M points for the Ernst angle solution are depicted respectively in black and in green. The control time T_c is set to 10^{-7} and the relaxation parameters to $\Gamma = 4$ and $\gamma = 2$. Dimensionless units are used.

The uniform norm of the control field decreases with T_c so that the area of the field remains approximately constant.

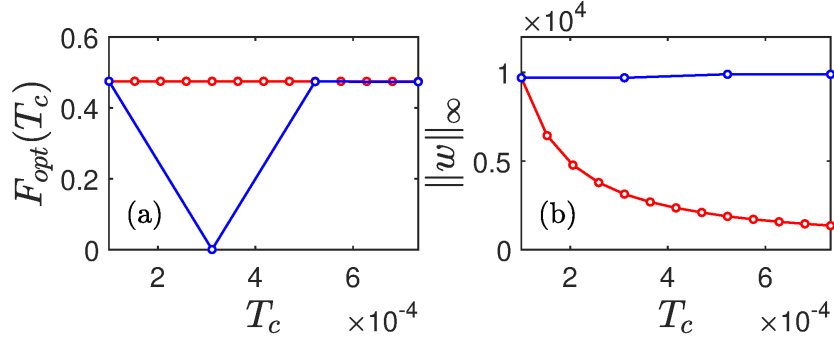


Figure 4.4: (Color online) Evolution of the figure of merit F_{opt} (panel (a)) and of the corresponding uniform norm of $\omega(t)$ (panel (b)) as a function of T_c (open circles). The coarse and the fine time discretizations are plotted respectively in blue (dark gray) and in red (light gray) lines. The relaxation parameters Γ and γ are set respectively to 4 and 2. Dimensionless units are used.

4.5.2 Extension to a spin ensemble with different offsets

We investigate in this section the efficiency of the numerical algorithm for optimizing an inhomogeneous spin ensemble. As a first example, we consider the control of 4 spins with different offsets. The optimization algorithm has been used for a specific control time $T_c = 5.22 \times 10^{-4}$. The optimal trajectories are plotted in Fig. 4.6 for the four offsets. The set of steady state and measurement points are also represented for $\omega \in [0, 10]$. The two sets of points are distributed along two circles of the Bloch ball. The figure of merit is given in Fig. 4.7 where the result for a homogeneous ensemble is also indicated. Note the robustness of F_{opt} against variation of the offset ω in the interval $[0, 10]$. This observation is not valid for larger offsets.

4.6 Conclusion

We have proposed in this study a numerical optimization algorithm for quantum systems with a periodic time evolution. The difficulty and the originality

Chapter 4. Optimal periodic control of spin systems: Application to the maximization of the signal to noise ratio per unit time

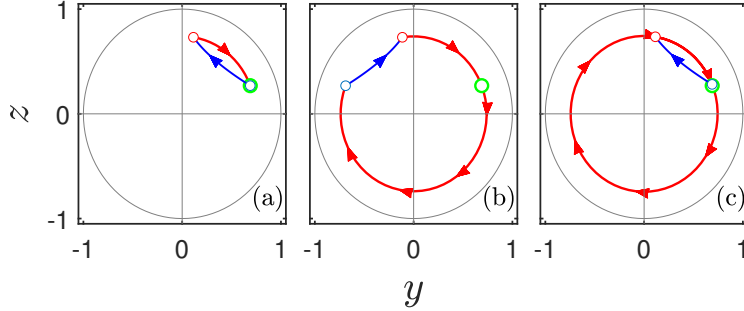


Figure 4.5: (Color online) Optimal trajectories for $T_c = 10^{-4}$ (panel (a)), 4.16×10^{-4} (panel (b)) and 7.33×10^{-4} (panel (c)) corresponding to the coarse discretization of Fig. 4.4. The open blue (dark gray) and red (light gray) circles represent respectively the steady state and measurement points. The controlled trajectory is plotted in solid red (light gray) line, the free relaxation in solid blue (dark gray) line. The measurement point of the Ernst angle solution corresponds to the green open circle. Dimensionless units are used.

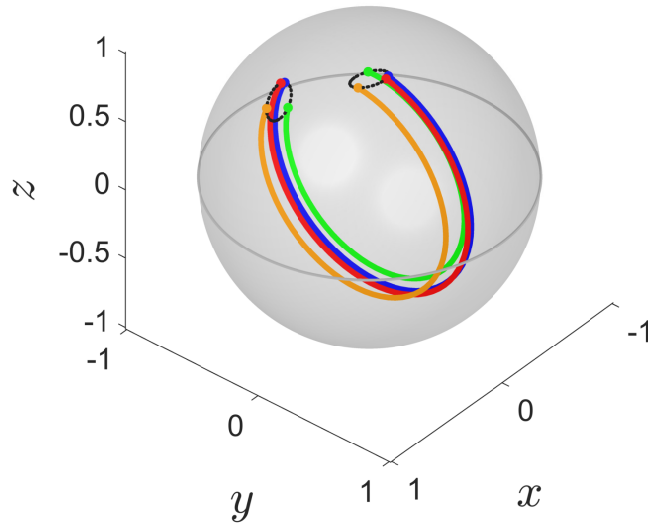


Figure 4.6: (Color online) Plot of the controlled trajectories for different offsets in the (x, y, z) - space. The parameters are set to $T_c = 5.22 \times 10^{-4}$, $\Gamma = 1.8$, $\gamma = 1$ and the four offsets are: $\omega_1 = 3.3333$, $\omega_2 = 5.5555$, $\omega_3 = 7.7778$ and $\omega_4 = 10$. The dashed lines indicate the positions of the steady states and measurement points in the interval $[0, 10]$. Dimensionless parameters are used.

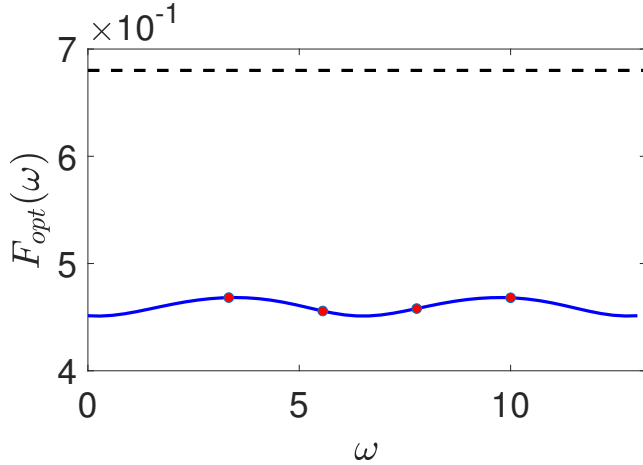


Figure 4.7: (Color online) Evolution of the figure of merit F_{opt} as a function of the offset ω . The red dots represent the four offsets used in the numerical optimization. The same dimensionless parameters as in Fig. 4.6 are used. The horizontal dashed line displays the figure of merit for a homogeneous spin ensemble with the same relaxation parameters Γ and γ .

of the procedure rely on the fact that the initial and target states of the dynamics are not known but have to be optimized together with the control field. The algorithm is built on a standard framework, except for the computation of the initial state and adjoint state of the system. A time discretization scheme of the algorithm is presented. It has the advantage of simplicity and general applicability. As an illustrative example, we have considered the maximization of the SNR for an ensemble of spin 1/2 particles. We have shown that the algorithm converges to the Ernst angle solution with a very high efficiency in the limit of a control duration going to 0. This analysis leads also to important insights into the design of optimal pulses. According to the used guess field, we have observed that the algorithm converges towards different fields associated with different steady states and measurement points. The different trajectories in the Bloch ball can be geometrically characterized. Some preliminary computations have also been done in the case of an inhomogeneous spin ensemble with different offsets. The results of this chapter can be viewed as an important step forward in the development of numerical optimal algorithms in quantum dynamics. In the case of an inhomogeneous spin ensemble, only four spins have been considered in this chapter and a first improvement would be the speed-up of the algorithm in order to reduce the computational time, e.g. by using parallelization tech-

Chapter 4. Optimal periodic control of spin systems: Application to the maximization of the signal to noise ratio per unit time

niques [125]. Another open question is the mathematical and numerical description of the transient regime, only the permanent periodic dynamics have been investigated in this work. Some results have been established in this direction for the Ernst angle solution, but it will be interesting to generalize this analysis to optimal fields of non-zero duration [115, 114, 116].

Chapitre 5

Algorithme de Shinnar-Le Roux

5.1 Introduction

L'algorithme connu sous l'abréviation SLR (Shinnar-Le Roux) a été développé de façon indépendante par M. Shinnar, S. Eleff, H. Subramanian, et J. S. Leigh [128], et par P. Le Roux [131]. Le but de cet algorithme est de déterminer la modulation d'amplitude et éventuellement de phase appliquée à la porteuse dans une expérience de Résonance Magnétique afin de créer une répartition en fréquence d'un vecteur d'état qui s'approche au mieux d'une forme prédéfinie. Cet algorithme repose sur la modélisation de la réponse des protons sous l'influence d'une séquence régulière d'impulsions courtes et puissantes (impulsions de Dirac), et sur l'usage de techniques classiques de traitement du signal échantillonné. Il repose aussi sur la représentation sous forme de *spineurs* des rotations induites par la dynamique associée aux équations de Bloch. Ce chapitre présente sous forme mathématique l'algorithme SLR, en ayant recours à deux outils, la transformée en Z et, donc, un ensemble de matrices appelé *spineurs*. Signalons que du point de vue de l'implémentation, cet algorithme est en soi très simple, et s'écrit sous forme de quelques lignes de code.

Parmi les avantages de l'algorithme SLR, notons qu'il s'agit d'une méthode non itérative, mais analytique, dans le sens où elle repose sur des calculs explicites et des formules algébriques exactes. Cela implique que les caractéristiques de l'impulsion sont connues avant même que la synthèse soit effectuée. Les méthodes itératives ne possèdent pas cet avantage et les caractéristiques exactes de l'impulsion ne sont pas connues à l'avance.

Ce chapitre est organisé de la manière suivante. Nous introduisons dans les sections 5.2 et 5.3 les équations du modèle physique considéré et le problème d'optimisation associé, respectivement. Dans la section 5.4, nous présentons l'algorithme SLR et le formalisme mathématique utilisé. La section 5.5 est dédiée à la conception d'impulsions, qui correspond en fait à la procédure inverse de SLR. Nous verrons que dans l'approche proposée par SLR, celle-ci se réduit à un problème d'approximation polynomiale.

On note j le nombre complexe tel que $j^2 = -1$ et $\|\cdot\|_2$ la norme euclidienne de \mathbb{R}^3 .

5.2 Contrôle des équations de Bloch

L'équation de Bloch se réduit à une rotation si les relaxations sont négligées. La solution de l'équation à un temps T est alors l'état initial multiplié par une matrice orthogonale 3×3 (nous verrons que cette rotation peut aussi être représentée par une matrice unitaire 2×2). Plus précisément, l'équation de Bloch est donnée par :

$$\begin{cases} \dot{M}(t) &= A(\omega_1(t)) M(t) \\ M(0) &= M_0, \end{cases} \quad (5.1)$$

où $M = (M_x(t), M_y(t), M_z(t))^T \in \mathbb{R}^3$ est le vecteur d'état, $\omega_1(t)$ représente le champ magnétique et $A(\omega_1(t))$ est définie par

$$A(\omega_1(t)) := \begin{pmatrix} 0 & -\omega_0 & \omega_{1,y}(t) \\ \omega_0 & 0 & -\omega_{1,x}(t) \\ -\omega_{1,y}(t) & \omega_{1,x}(t) & 0 \end{pmatrix},$$

où $\omega_{1,x}$ et $\omega_{1,y}$ sont les composantes du champ, qu'on note également $\omega_1(t) = \omega_{1,x}(t) + j\omega_{1,y}(t)$ dans le plan x,y du repère tournant au temps t et ω_0 est l'offset.

Comme nous l'avons vu dans les chapitres précédents, un problème typique de contrôle consiste à mener le système de son état initial à un état final fixé. C'est à ce problème que s'attaque SLR.

Soit $T > 0$, on approche chacune des deux fonctions $\omega_{1,x}(t)$ et $\omega_{1,y}(t)$ par fonction en escalier, où chaque marche correspond à une durée ΔT . On

Chapitre 5. Algorithme de Shinnar-Le Roux

peut alors caractériser le champ par les deux suites de valeurs : $\omega_{1,x}(i\Delta T)$ et $\omega_{1,y}(i\Delta T)$, $i = 1, \dots, n$, on obtient ainsi deux suites de n réels avec $n \Delta T = T$.

Dans chaque intervalle de temps $[i\Delta T, (i+1)\Delta T[$, l'axe de rotation associé à l'équation de Bloch (5.1) est constant. La vitesse angulaire a comme valeur

$$\Omega = \sqrt{\omega_0^2 + (\omega_{1,x}^i)^2 + (\omega_{1,y}^i)^2},$$

et l'axe est le vecteur unitaire de coordonnées.

$$\vec{U}(i) = \frac{1}{\Omega} \begin{pmatrix} -\omega_{1,x}^i \\ -\omega_{1,y}^i \\ -\omega_0 \end{pmatrix}.$$

La rotation résultante sur l'intervalle de temps ΔT s'écrit sous forme d'une matrice 3×3

$$R_i = \begin{pmatrix} 0 & -\omega_0 & \omega_{1,y}^i \\ \omega_0 & 0 & -\omega_{1,x}^i \\ -\omega_{1,y}^i & \omega_{1,x}^i & 0 \end{pmatrix}.$$

La relation entre les valeurs M_i et M_{i+1} de M au temps $t = i\Delta T$ et $t = (i+1)\Delta T$ s'écrit alors sous la forme matricielle :

$$M_i = R_i M_{i-1}, \forall i = 1, \dots, n.$$

Si une séquence de n impulsions est appliquée, la solution de l'équation de Bloch est par conséquent le produit de n rotations R_i :

$$M_n = R_n R_{n-1} \cdots R_1 M_0.$$

5.3 Problème d'optimisation

On aborde un problème de contrôle qui porte sur le vecteur d'état M et qui consiste à calculer le champ $\omega_1(t)$ dans la classe des fonctions en escaliers décrite précédemment, pour un état initial M_0 donné. En suivant une démarche classique en contrôle optimal on se ramène alors à un problème d'optimisation de la forme

$$\min_{\omega_1(t)} J(M, \omega_1(t)),$$

où $J(M, \omega_1(t))$ est une fonctionnelle à maximiser qui permet de mesurer la qualité du contrôle. Un exemple simple de telle fonctionnelle est :

$$J(M, \omega_1(t)) = \int_{\omega_0 \in \Omega} \|M(T, \omega_0) \cdot \vec{z} - f_{cible}(\omega_0)\|^2 d\omega_0, \quad (5.2)$$

où $\Omega = [-\omega_{\max}, \omega_{\max}]$ et où la fonction $\omega_0 \mapsto f_{cible}(\omega_0)$ est en général la fonction indicatrice d'un sous-intervalle de Ω . Comme cela a été dit dans les chapitres précédents, des méthodes numériques comme les algorithmes de gradient ont été utilisées pour résoudre ce type de problème. Cependant, des techniques plus spécifiques au contrôle bilinéaire d'équation de type Schrödinger existent. Elles tirent parti de la structure de (5.1) pour proposer une démarche originale. C'est par exemple le cas des Schémas monotones [31]. C'est également le cas de l'algorithme SLR. Dans la section suivante, nous présentons cette stratégie de conception d'impulsions.

5.4 Principe de l'algorithme Shinnar-Le Roux

L'algorithme SLR utilise l'écriture des rotations sous forme de *spineurs* pour caractériser la rotation finale. Cette approche revient à utiliser des représentations dans le groupe unitaire spécial SU_2 plutôt que dans le groupe des matrices orthogonales O_3 .

5.4.1 Représentation des rotations sous forme de spineurs

Du point de vue mathématique, il n'y a aucune différence entre les spineurs [159, 160] et les matrices SU_2 [161, 162, 163], ou entre un spineur et le vecteur d'état solution de l'équation de la mécanique quantique pour un système quantique à deux niveaux [160, 161, 164], ou même entre une matrice SU_2 et un quaternion [165, 166, 167], lorsque celui-ci est à composantes réelles [168]. C'est cette dernière forme que l'on va utiliser pour représenter des rotations [166] dans de l'espace ordinaire à trois dimensions.

Dans ce qui suit, nous présentons brièvement le formalisme des quaternions et des spineurs.

Chapitre 5. Algorithme de Shinnar-Le Roux

Cas général

Considérons dans \mathbb{R}^3 un vecteur unitaire défini à partir de ses composantes x, y, z (avec $x^2 + y^2 + z^2 = 1$) par

$$v = \begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix}.$$

Dans le formalisme des spineurs, celui-ci est représenté par une matrice 2×2 dans SU_2 ,

$$V = \begin{pmatrix} z & x - jy \\ x + jy & -z \end{pmatrix}. \quad (5.3)$$

Une rotation est également représentée dans SU_2 par une matrice 2×2 à composantes complexes de la forme

$$Q = \begin{pmatrix} \alpha & -\beta^* \\ \beta & \alpha^* \end{pmatrix}, \quad (5.4)$$

avec la contrainte de normalisation

$$|\alpha|^2 + |\beta|^2 = 1. \quad (5.5)$$

Dans la suite de ce chapitre, nous représenterons souvent un spineur par le couple (α, β) décrit ci-dessus ou par la matrice Q introduite en (5.4).

On peut écrire de manière plus explicite une matrice de rotation dans ce formalisme. Étant donné une rotation $R(\Theta, \vec{n})$ d'angle Θ autour d'un axe unitaire \vec{n} de composantes n_x, n_y, n_z (avec $n_x^2 + n_y^2 + n_z^2 = 1$), le quaternion correspondant s'écrit

$$Q = \cos\left(\frac{\Theta}{2}\right) \mathbf{1} - \sin\left(\frac{\Theta}{2}\right) [n_x \sigma_x + n_y \sigma_y + n_z \sigma_z],$$

avec les *matrices de Pauli*

$$\sigma_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma_y = \begin{pmatrix} 0 & -j \\ j & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix},$$

et où $\mathbf{1}$ représente la matrice identité de dimension 2×2 . On obtient donc la représentation :

$$Q = \begin{pmatrix} \cos\left(\frac{\Theta}{2}\right) - j \sin\left(\frac{\Theta}{2}\right) n_z & -j \sin\left(\frac{\Theta}{2}\right) X^* \\ -j \sin\left(\frac{\Theta}{2}\right) X & \cos\left(\frac{\Theta}{2}\right) - j \sin\left(\frac{\Theta}{2}\right) n_z \end{pmatrix}, \quad (5.6)$$

avec $X = n_x + jn_y$. Par identification entre (5.4) et (5.6), on a :

$$\begin{cases} \alpha := \cos(\frac{\Theta}{2}) - j \sin(\frac{\Theta}{2})n_z, \\ \beta := -j \sin(\frac{\Theta}{2})X. \end{cases} \quad (5.7)$$

On vérifie facilement que α et β satisfont la contrainte de normalisation (5.5).

Si dans l'espace ordinaire \mathbb{R}^3 , le vecteur v est transformé par la rotation $R(\Theta, \vec{n})$ en un vecteur v^+ , alors ce vecteur est représenté dans SU_2 par la matrice V^+ obtenue à partir de V par

$$V^+ = QVQ^*,$$

où V est définie par (5.3). De la même manière, la composition de rotations correspond à la multiplication des quaternions respectifs. La composition $R_2 \circ R_1$ est ainsi représentée par Q_2Q_1 . La relation entre v et v^+

$$v^+ = R_2 \circ R_1 v,$$

est alors représentée par

$$V^+ = Q_2Q_1 V (Q_2Q_1)^* = Q_2(Q_1 V Q_1^*)Q_2^*$$

Quelques exemples

Rotation autour de z : Soit une rotation autour de z et d'angle Θ . Dans ce cas, on remplace dans (5.6) n_z et X par 1 et 0 respectivement. Le quaternion Q correspondant est donné par :

$$Q(\phi, \vec{z}) = \begin{pmatrix} e^{-j\frac{\phi}{2}} & 0 \\ 0 & e^{j\frac{\phi}{2}} \end{pmatrix}.$$

et son spineur est $(e^{-j\frac{\phi}{2}}, 0)$.

Rotation autour d'un axe : Soit $R(\theta, \vec{u})$ une rotation d'angle θ autour d'un axe $\vec{u} = (u_x, u_y, 0)^\top$ dans le plan x, y :

$$\begin{pmatrix} u_x^2(1 - \cos \theta) + \cos \theta & u_x u_y(1 - \cos \theta) & u_y \sin \theta \\ u_x u_y(1 - \cos \theta) & u_y^2(1 - \cos \theta) + \cos \theta & -u_x \sin \theta \\ -u_y \sin \theta & u_x \sin \theta & \cos \theta \end{pmatrix}.$$

Chapitre 5. Algorithme de Shinnar-Le Roux

Si on note φ l'angle qui fait le vecteur $\vec{u} = \vec{u}(\varphi)$ avec \vec{x} , on peut décomposer cette rotation en un produit de trois rotations d'axes orthogonaux

$$R(\theta, \vec{u}(\varphi)) = R(\varphi, \vec{z}) \circ R(\theta, \vec{x}) \circ R(-\varphi, \vec{z}).$$

À l'aide du quaternion défini dans (5.6), on peut représenter les quaternions correspondants aux rotations $R(\varphi, \vec{z})$, $R(\theta, \vec{x})$ et $R(-\varphi, \vec{z})$. Ainsi, la représentation sous forme d'un quaternion de la rotation $R(\theta, \vec{u}(\varphi))$ est donnée par :

$$Q(\theta, \vec{u}(\varphi)) = \begin{pmatrix} e^{-j\frac{\varphi}{2}} & 0 \\ 0 & e^{j\frac{\varphi}{2}} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos(\frac{\theta}{2}) & -j \sin(\frac{\theta}{2}) \\ -j \sin(\frac{\theta}{2}) & \cos(\frac{\theta}{2}) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{j\frac{\varphi}{2}} & 0 \\ 0 & e^{-j\frac{\varphi}{2}} \end{pmatrix} \quad (5.8)$$

$$= \begin{pmatrix} \cos(\frac{\theta}{2}) & -j \sin(\frac{\theta}{2}) e^{-j\frac{\varphi}{2}} \\ -j \sin(\frac{\theta}{2}) e^{j\frac{\varphi}{2}} & \cos(\frac{\theta}{2}) \end{pmatrix}. \quad (5.9)$$

5.4.2 Algorithme de Shinnar-Le Roux

L'algorithme de Shinnar-Le Roux consiste dans un premier temps à établir une relation bijective entre une impulsion en escalier dans le domaine temporel (représentée par $n + 1$ éléments d'amplitude constante) et le profil fréquentiel de l'impulsion décrit par les coefficients d'un polynôme d'ordre n . Plus précisément, le problème direct SLR consiste à supposer connue une suite de champs représentés sous la forme discrétisée en temps $(\omega_{1,x}^i, \omega_{1,y}^i)_{i=1,\dots,n}$ et à chercher la représentation (sous forme de suites de spineurs définie par $(\alpha_i, \beta_i)_{i=1,\dots,n}$) de la rotation résultante.

Le problème inverse consiste, étant donné une répartition de spineurs $(\alpha_i)_{i=1,\dots,n}$ et $(\beta_i)_{i=1,\dots,n}$, à retrouver les champs discrétisés qui génère cette représentation. On note cette procédure SLR^{-1} .

Détaillons maintenant ces deux procédures.

Représentation de la rotation associée à un contrôle

Dans un intervalle $[i\Delta T, (i+1)\Delta T[$ de longueur ΔT , sur lequel les contrôles $\omega_{1,x}^i$ et $\omega_{1,y}^i$ sont constants, la rotation R_i peut être décomposée, moyennant une approximation de type splitting, en deux rotations, à l'aide de l'opérateur :

$$e^{(\omega_0\sigma_z + \omega_{1,x}^i\sigma_x + \omega_{1,y}^i\sigma_y)\Delta T} \simeq e^{(\omega_{1,x}^i\sigma_x + \omega_{1,y}^i\sigma_y)\Delta T} e^{(\omega_0\sigma_z)\Delta T}.$$

Dans ce cadre, la rotation R_i s'écrit comme une rotation autour de l'axe z d'un angle $-\omega_0\Delta T$ suivie d'une rotation autour d'un axe contenu dans le

plan x, y faisant un angle φ_i avec l'axe \vec{x} et d'angle θ_i , dans la représentation SU_2 :

$$R_i = R(\theta_i, \vec{u}(\varphi_i)) \circ R(-\omega_0 \Delta T, z).$$

On peut définir pour $i = 1, \dots, n$, les impulsions θ_i et φ_i comme suit :

$$\theta_i := \Delta T \sqrt{(\omega_{1,x}^i)^2 + (\omega_{1,y}^i)^2}, \quad (5.10)$$

$$\varphi_i := \tan^{-1} \left(\frac{\omega_{1,y}^i}{\omega_{1,x}^i} \right). \quad (5.11)$$

La rotation globale associée aux contrôles $(\omega_{1,x}^k, \omega_{1,y}^k)_{k=1, \dots, i}$ sur l'intervalle $[0, i\Delta T]$ est alors obtenue par la composition de ces rotations élémentaires

$$\begin{aligned} R_i &= R(\theta_i, \vec{u}(\varphi_i)) \circ R(-\omega_0 \Delta T, z) \circ R(\theta_{i-1}, \vec{u}(\varphi_{i-1})) \circ R(-\omega_0 \Delta T, z) \circ \\ &\dots \circ R(\theta_1, \vec{u}(\varphi_1)) \circ R(-\omega_0 \Delta T, z) \circ R(\theta_0, \vec{u}(\varphi_0)). \end{aligned}$$

Dans SU_2 , cette rotation se traduit par le quaternion

$$\begin{aligned} Q_i &= Q(\theta_i, \vec{u}(\varphi_i)) Q(-\omega_0 \Delta T, z) Q(\theta_{i-1}, \vec{u}(\varphi_{i-1})) Q(-\omega_0 \Delta T, z) \\ &\dots Q(\theta_1, \vec{u}(\varphi_1)) Q(-\omega_0 \Delta T, z) Q(\theta_0, \vec{u}(\varphi_0)). \end{aligned}$$

En utilisant l'équation (5.9) nous pouvons détailler les coefficients de ces différentes matrices. La matrice quaternion $Q(\theta_i, \vec{u}(\varphi_i))$ s'écrit ainsi

$$Q(\theta_i, \vec{u}(\varphi_i)) = \begin{pmatrix} c_i & -s_i^* \\ s_i & c_i \end{pmatrix},$$

où c_i et s_i sont définies par

$$\begin{cases} c_i := \cos(\frac{\theta_i}{2}), \\ s_i := e^{j\varphi_i} \sin(\frac{\theta_i}{2}), \end{cases} \quad (5.12)$$

et la matrice quaternion $Q(-\omega_0 \Delta T, z)$ est représentée par

$$Q(-\omega_0 \Delta T, z) = \begin{pmatrix} e^{j\frac{\omega_0 \Delta T}{2}} & 0 \\ 0 & e^{-j\frac{\omega_0 \Delta T}{2}} \end{pmatrix}.$$

SLR dans le sens direct

Voyons maintenant comment on peut associer un polynôme à cette rotation. Dans ce qui suit, on va utiliser la variable

$$Z = e^{j\omega_0 \Delta T}. \quad (5.13)$$

Chapitre 5. Algorithme de Shinnar-Le Roux

Supposons que l'on connaisse la matrice quaternion Q_{i-1} associée à la rotation sur $[0, (i-1)\Delta T]$. En composant par la rotation élémentaire sur $[i\Delta T, (i+1)\Delta T]$, on obtient :

$$Q_i = Q(\theta_i, \vec{u}(\varphi_i))Q(-\omega_0\Delta T, z)Q_{i-1}.$$

En notant (α_i, β_i) le spineur représentatif de Q_i défini par (5.7) et vérifie

$$|\alpha_i|^2 + |\beta_i|^2 = 1. \quad (5.14)$$

On trouve alors

$$\begin{pmatrix} \alpha_i & -\beta_i^* \\ \beta_i & \alpha_i^* \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} c_i & -s_i^* \\ s_i & c_i \end{pmatrix} \begin{pmatrix} Z^{\frac{1}{2}} & 0 \\ 0 & Z^{-\frac{1}{2}} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \alpha_{i-1} & -\beta_{i-1}^* \\ \beta_{i-1} & \alpha_{i-1}^* \end{pmatrix}.$$

En considérant la première colonne et utilisant le changement de variable

$$\begin{aligned} a_i &= Z^{\frac{i}{2}}\alpha_i \\ b_i &= Z^{\frac{i}{2}}\beta_i, \end{aligned}$$

on observe grâce à la formule (5.14) que la contrainte $|a_i|^2 + |b_i|^2 = 1$ est vérifiée. On a plus précisément :

$$\begin{pmatrix} a_i \\ b_i \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} c_i & -s_i^* \\ s_i & c_i \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & Z^{-1} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_{i-1} \\ b_{i-1} \end{pmatrix}. \quad (5.15)$$

On fixe la première impulsion par

$$a_0 = c_0, \quad b_0 = s_0,$$

où c_0 et s_0 sont définies par le système (5.12). En effectuant la deuxième itération, on obtient

$$a_1 = c_1c_0 - s_1^*s_0Z^{-1}, \quad b_1 = s_1c_0 - c_1s_0Z^{-1},$$

ceci montre que les quantités a et b sont des polynômes de la variable Z^{-1} . Itérons ce procédé. D'après la relation de récurrence, on obtient à une certaine étape n deux polynômes a_n et b_n de variable Z^{-1} , dont on note $(a_{n,k})_{k=0,\dots,n}$ et $(b_{n,k})_{k=0,\dots,n}$ les coefficients :

$$\begin{aligned} a_n &= \sum_{k=0}^n a_{n,k}Z^{-k} \\ b_n &= \sum_{k=0}^n b_{n,k}Z^{-k}. \end{aligned}$$

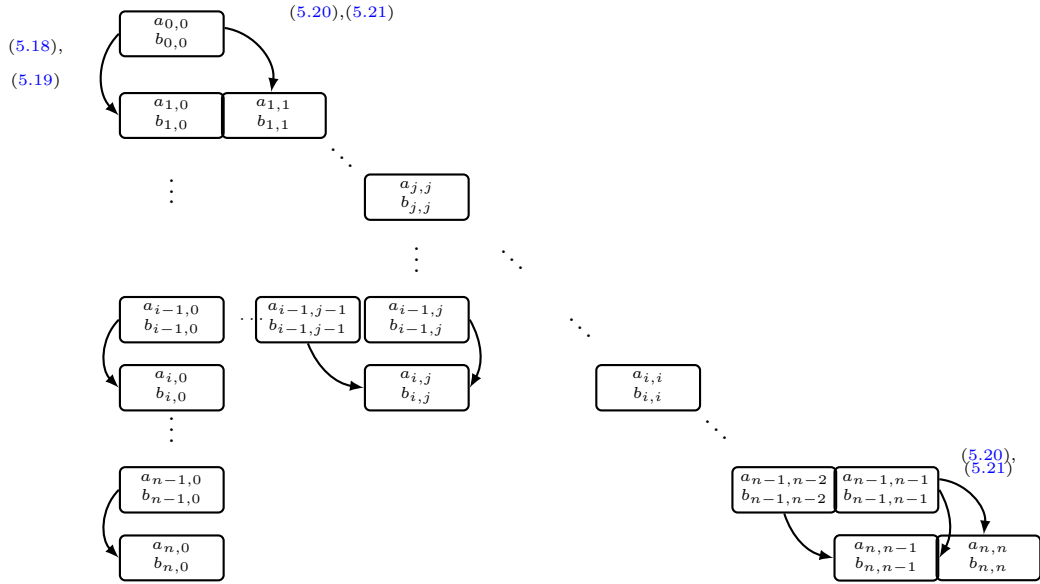


FIGURE 5.1 : Schéma de conception des deux polynômes a_n et b_n .

Ces coefficients vérifient alors les relations de récurrence, pour $k = 1, \dots, n-1$:

$$a_{n,k} = c_n a_{n-1,k} - s_n^* b_{n-1,k-1} \quad (5.16)$$

$$b_{n,k} = s_n a_{n-1,k} - c_n^* b_{n-1,k-1}, \quad (5.17)$$

qui sont complétés aux rangs $k = 0$ et $k = n$ par :

$$a_{n,0} = c_n a_{n-1,0} \quad (5.18)$$

$$b_{n,0} = s_n a_{n-1,0} \quad (5.19)$$

$$a_{n,n} = -s_n^* b_{n-1,n-1} \quad (5.20)$$

$$b_{n,n} = c_n b_{n-1,n-1}. \quad (5.21)$$

On résume ces dernières équations dans le schéma représenté à la figure 5.1.

Procédure inverse : l'algorithme SLR^{-1}

On retiendra de la section précédente que la rotation d'ensemble imposée par un train de $n+1$ impulsions est caractérisée par un quaternion Q_n déterminé lui-même par deux composantes a_n , b_n qui sont des polynômes d'ordre n

Chapitre 5. Algorithme de Shinnar-Le Roux

de la variable Z^{-1} (avec Z définie par l'équation (5.13)) et qui vérifient la contrainte de normalisation pour tout Z de norme 1, écrite ici :

$$|a_n(Z^{-1})|^2 + |b_n(Z^{-1})|^2 = 1. \quad (5.22)$$

La contrainte de normalisation que nous avons imposée, exprimée en fonction des coefficients des polynômes donne $n + 1$ équations par identification. En écrivant uniquement le coefficient d'ordre n en Z^{-1} , on a

$$a_{n,0}a_{n,n}^* + b_{n,0}b_{n,n}^* = 0.$$

Cette dernière égalité implique la propriété suivante :

$$\frac{b_{n,0}}{a_{n,0}} = \frac{-a_{n,n}^*}{b_{n,n}^*} \quad (5.23)$$

Codage du problème de contrôle sous forme d'un polynôme :

Voyons maintenant comment traduire le problème de contrôle (5.2) en terme d'une fonction que l'on approchera ensuite par un polynôme.

On considère, pour tout $\omega_0 \in \Omega$, l'état initial $M(t = 0, \omega_0) = (1, 0, 0)^T$ et on écrit l'état final sous la forme $M(t = T, \omega_0) = (x(\omega_0), y(\omega_0), z(\omega_0))^T$. On souhaite que $\omega_0 \mapsto M(T, \omega_0) \cdot \vec{z}$ approche au mieux la fonction $\omega_0 \mapsto f_{cible}(\omega_0)$ sur l'intervalle Ω . Nous avons vu que l'évolution sur $[0, T]$ pouvait être associée à une rotation globale

$$R(\omega_0) := \begin{pmatrix} \alpha(\omega_0) & -\beta^*(\omega_0) \\ \beta(\omega_0) & \alpha^*(\omega_0) \end{pmatrix}$$

En utilisant la représentation sous forme de quaternions, l'état initial et l'état final s'écrivent :

$$M(t = 0, \omega_0) = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad M(t = T, \omega_0) = \begin{pmatrix} z(\omega_0) & x(\omega_0) - jy(\omega_0) \\ x(\omega_0) + jy(\omega_0) & -z(\omega_0) \end{pmatrix}.$$

La relation :

$$M(t = T, \omega_0) = R(\omega_0)M(t = 0, \omega_0),$$

se traduit donc par

$$\begin{pmatrix} z(\omega_0) & x(\omega_0) - jy(\omega_0) \\ x(\omega_0) + jy(\omega_0) & -z(\omega_0) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\beta^*(\omega_0) & \alpha(\omega_0) \\ \alpha^*(\omega_0) & \beta(\omega_0) \end{pmatrix}.$$

Puisque le vecteur $M(t, \omega_0)$ est toujours unitaire, le problème de contrôle (5.2) revient donc à chercher des contrôles $\omega_{1,x}, \omega_{1,y}$ tels que

$$-\beta^*(\omega_0) \approx f_{cible}(\omega_0).$$

Nous avons vu que l'introduction d'une discrétisation en temps implique que $\beta(\omega_0)$ est un polynôme en la variable $Z = e^{j\omega_0\Delta T}$. L'idée est donc d'approcher f_{cible} par un polynôme P^* de cette forme et ensuite de chercher $\omega_{1,x}, \omega_{1,y}$ réalisant

$$-\beta^*(\omega_0) \approx P^*(Z).$$

La résolution de ce dernier problème est précisément l'objet de l'algorithme SLR^{-1} .

Détermination des angles θ_n et φ_n associés à la dernière impulsion :

D'après ce qui précède, si a_n et b_n sont issus d'un train de $n + 1$ impulsions, alors la dernière impulsion associée aux coefficients $a_{n,0}, b_{n,0}$ définis dans les équations (5.18) et (5.19), peut être déterminée à l'aide de l'introduction de la variable :

$$t_n := \frac{s_n}{c_n} = \frac{b_{n,0}}{a_{n,0}}. \quad (5.24)$$

D'après les définitions (5.12), on a $t_n = e^{j\varphi_n} \tan(\theta_n/2)$, ce qui permet de déterminer φ_n et θ_n par

$$\theta_n = 2 \arctan(|t_n|), \quad \varphi_n = \angle t_n \quad (5.25)$$

ainsi, on peut déterminer c_n et s_n par les formules :

$$\begin{cases} c_n = \cos(\frac{\theta_n}{2}), \\ s_n = e^{j\varphi_n} \sin(\frac{\theta_n}{2}), \end{cases} \quad (5.26)$$

L'itération inverse : Supposons maintenant fixés c_n et s_n . En écrivant l'équation (5.15) pour $i = n$, on obtient

$$\begin{pmatrix} a_n \\ b_n \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} c_n & -s_n^* \\ s_n & c_n \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & Z^{-1} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_{n-1} \\ b_{n-1} \end{pmatrix}.$$

En inversant cette rotation, on obtient

$$a_{n-1} = c_n a_n + s_n^* b_n \quad (5.27)$$

$$b_{n-1} = (-s_n a_n + c_n b_n) Z. \quad (5.28)$$

On peut vérifier que le terme d'ordre 0 de $(-s_n a_n + c_n b_n)$ est nul en vertu de (5.24) et qu'après multiplication par Z , on obtient bien un polynôme b_{n-1} d'ordre $n - 1$. De même, le coefficient d'ordre n de $c_n a_n + s_n^* b_n$ est nul en vertu de (5.24) et (5.23) et la quantité a_{n-1} est un polynôme d'ordre $n - 1$ en Z^{-1} . Avant de passer à l'itération suivante, nous vérifions la contrainte de normalisation à l'aide du lemme suivant.

Chapitre 5. Algorithme de Shinnar-Le Roux

Lemme 5.1. Soient n un entier fixé, a_n et b_n deux polynômes d'ordre n en Z^{-1} vérifiant la contrainte de normalisation (5.22). Alors, les deux polynômes a_{n-1} et b_{n-1} d'ordre $n - 1$ en Z^{-1} défini par (5.27) et (5.28), vérifient la contrainte de normalisation au rang $n - 1$.

Preuve :

$$\begin{aligned}
 |a_{n-1}|^2 + |b_{n-1}|^2 &= a_{n-1}^* a_{n-1} + b_{n-1}^* b_{n-1} \\
 &= (c_n a_n + s_n^* b_n)^* (c_n a_n + s_n^* b_n) + (-s_n a_n + c_n b_n)^* Z^* (-s_n a_n + c_n b_n) Z \\
 &= c_n^2 a_n^* a_n + c_n s_n^* a_n^* b_n + s_n c_n a_n b_n^* + s_n s_n^* b_n^* b_n + s_n^* s_n a_n^* a_n - s_n^* c_n a_n^* b_n \\
 &\quad - s_n c_n a_n b_n^* + c_n^2 b_n^* b_n \\
 &= (c_n^2 + s_n s_n^*) a_n^* a_n + (c_n^2 + s_n s_n^*) b_n^* b_n,
 \end{aligned}$$

d'après les définitions de c_n et s_n donnés par (5.26), on a $c_n^2 + s_n s_n^* = 1$, on obtient donc

$$|a_{n-1}|^2 + |b_{n-1}|^2 = a_n^* a_n + b_n^* b_n = 1.$$

□

D'après le lemme 5.1, on peut donc répéter ce raisonnement à l'ordre $n - 1$, puis $n - 2$, \dots et ainsi de suite jusqu'à l'ordre 0.

L'algorithme SLR^{-1} est résumé par le schéma représenté à la figure 5.2 et peut être implémenté très simplement en langage Octave (ou Matlab) comme c'était le cas pour l'Algorithme 1.

Algorithme 1 : on suppose qu'on connaît a_n et b_n deux polynômes d'ordre n et de $n + 1$ coefficients, et on va déterminer la suite de champs $(\omega_1^i)_{i=0, \dots, n}$.

pour i de n jusqu'à 0 **faire**

 Calculer t_i par l'équation (5.24).

 Calculer c_i et s_i d'après (5.26).

 Calculer les impulsions θ_i et φ_i d'après l'équation (5.25).

 Calculer les composantes du champ $\omega_{1,x}^i$ et $\omega_{1,y}^i$ en utilisant les équations (5.10) et (5.11).

si $i \geq 1$ **alors**

 calculer a_{i-1} et b_{i-1} d'après les équations (5.27) et (5.28)

sinon

 l'algorithme s'arrête

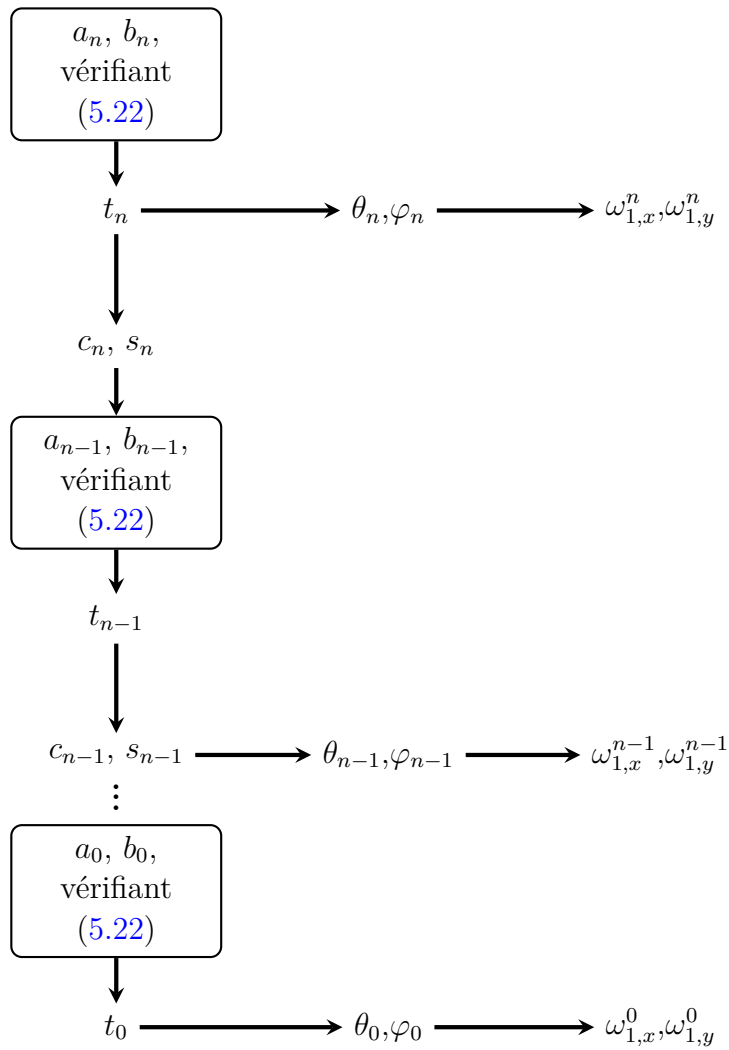


FIGURE 5.2 : Schéma de SLR^{-1} qui représente les étapes de la conception d'impulsion.



FIGURE 5.3 : Schéma de SLR

5.5 Conception d'impulsions par la conception des polynômes

Revenons à notre objectif initial : concevoir un champ à l'aide de deux polynômes a_n et b_n . Nous voyons qu'ayant à disposition l'algorithme SLR^{-1} , il ne nous reste plus qu'à déterminer deux polynômes correspondant à un filtre à réponse impulsionnelle finie (RIF). En pratique, on tente d'approcher au mieux l'un de ces deux polynômes, on commence par exemple par b_n . Il existe pour cela un algorithme, l'*Algorithme de Remez* (voir l'annexe B) fondé sur le principe d'équioscillation de Tchebychev [133], et dont l'application au traitement du signal a été réalisée par Parks et McClellan dans l'algorithme du même nom [138]. Cette approximation par un polynôme est un problème classique du filtrage numérique. L'algorithme de Parks-McClellan permet d'en approcher une solution. Le polynôme est alors caractérisé par trois paramètres : l'oscillation dans la bande passante (*ripple in*), l'oscillation en dehors de la bande passante (*ripple out*), et la largeur de la bande de transition W .

Revenant à SLR^{-1} , voyons comment le polynôme a_n peut être déterminé de manière unique. D'après la contrainte de normalisation (5.22), nous avons :

$$|a_n(Z^{-1})| = \sqrt{1 - b_n(Z^{-1})b_n^*(Z^{-1})}.$$

Une contrainte supplémentaire est nécessaire pour rendre le choix de a_n unique. Une possibilité est de choisir a_n comme étant le polynôme de phase minimale, ce qui est l'approche habituellement adoptée en traitement du signal. Cette contrainte s'écrit (voir [132], p. 56)

$$a_n(Z^{-1}) = |a_n(Z^{-1})| \exp[i\mathcal{H}(\log |a_n(Z^{-1})|)],$$

où \mathcal{H} est l'opérateur de la transformation de Hilbert. Une fois que a_n et b_n ont été déterminés, le champ de contrôle peut être calculé à l'aide de SLR^{-1} . Ce processus de conception des impulsions est résumé par le schéma de la figure 5.3.

5.6 Résultats numériques

Dans cette section, nous présentons des résultats numériques concernant l'algorithme SLR, ainsi qu'une comparaison avec une méthode de type GRAPE (voir le chapitre 4).

Dans les simulations numériques, nous considérons le système (5.1) avec $M_0 = (1, 0, 0)^\top$ et la fonctionnelle J définie par (5.2) dans la section 5.3 avec $M_{cible} = (0, 1, 0)^\top$. Nous considérons des degrés de polynômes (i.e. un nombre de pas de temps) variant selon une progression géométrique : $n \in (\ell_i := 2^i)_{i=5, \dots, 14}$. On fixe le temps final $T = 4$, $\omega_{\max} = 2$ et on prend 300 offset dans Ω .

Dans ce qui suit, nous réalisons 3 expériences numériques : la première concerne la convergence de la fonctionnelle pour différents valeurs de n , la deuxième porte sur la convergence de l'algorithme SLR^{-1} ; et la troisième consiste en une comparaison entre la méthode de SLR et une méthode de type GRAPE (méthode de gradient). D'autres résultats de comparaison avec l'algorithme SLR^{-1} ont été effectués dans [169, 170].

Convergence de la fonctionnelle : Dans ce test numérique, nous déterminons le contrôle optimal en suivant les étapes du schéma de l'algorithme SLR^{-1} (voir figure 5.3). À l'aide de l'algorithme de Remez, nous calculons un polynôme qui approche f_{cible} . Nous répétons ce calcul pour différentes valeurs de n en calculant à chaque fois la valeur de la fonctionnelle correspondante. La figure 5.4 montre que les fonctionnelles convergent de manière croissante avec la valeur de n . Autrement dit, le contrôle obtenu par SLR^{-1} est d'autant plus efficace que son degré est élevé. Ce résultat, bien que d'apparence naturelle, n'était pas prévu théoriquement

Convergence de l'algorithme SLR : Le test numérique présenté dans ce paragraphe concerne la vitesse de convergence de SLR^{-1} . Plus précisément, nous calculons l'erreur E_i définie par

$$E_i = |J(M, \omega_1^{\ell_{14}}) - J(M, \omega_1^{interp, \ell_i})|, \quad i = 5, \dots, 13,$$

où $\omega_1^{\ell_{14}}$ est le contrôle obtenu par SLR^{-1} pour $n = l_{14}$ et $\omega_1^{interp, \ell_i}$ est l'interpolation du contrôle obtenu par SLR^{-1} pour $n = l_i$, sur l'ensemble des fonctions en escalier associées à une grille uniforme de l_{14} points de l'intervalle $[0, T]$.

Dans la figure 5.5, on observe que les valeurs de l'erreur E_i décroissent linéairement par rapport à n .

Chapitre 5. Algorithme de Shinnar-Le Roux

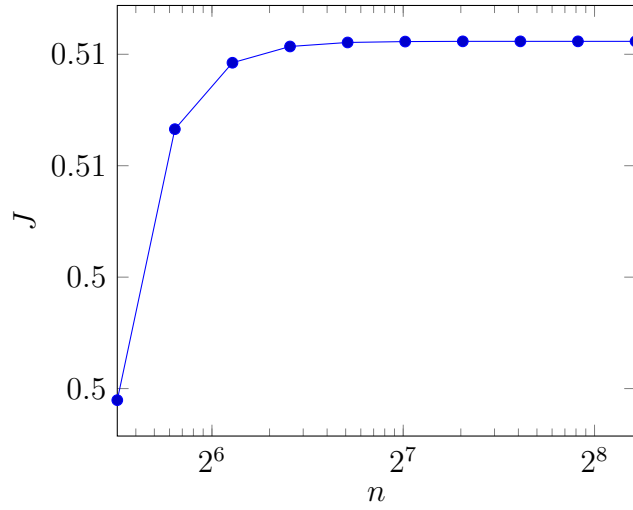


FIGURE 5.4 : Convergence de la fonctionnelle vs les nombres de pas de temps n .

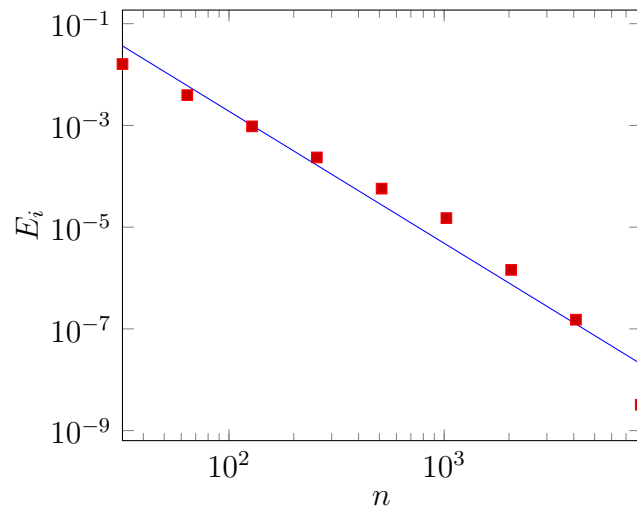


FIGURE 5.5 : Convergence linéaire de l'algorithme SLR.

Comparaison entre la méthode de SLR et une méthode de type GRAPE : Afin d'évaluer la performance de l'algorithme SLR, nous faisons une comparaison avec une méthode de type GRAPE en mesurant le temps de calcul (CPU Time ¹) du contrôle optimal obtenu par les deux méthodes. Nous effectuons deux tests pour chaque valeur de n de la manière suivante :

1. Mesure du temps de calcul du contrôle à l'aide de l'algorithme SLR.
2. Mesure du temps de calcul du contrôle à l'aide d'une méthode de type GRAPE en initialisant l'algorithme par un contrôle nul et nous arrêtons les itérations quand le critère suivant est vérifié :

$$|J(M, \omega_1^{SLR}(t)) - J(M, \omega_1^m(t))| \leq tol,$$

où $\omega_1^{SLR}(t)$ est le contrôle obtenu par SLR^{-1} , $\omega_1^m(t)$ correspond au contrôle à l'itération m et une tolérance $tol = 10^{-2}$.

Le tableau 5.1 donne les temps de calcul pour différentes valeurs de n . Nous nous apercevons que l'algorithme SLR^{-1} est efficace et rapide par rapport à la méthode de type GRAPE. Nous remarquons que le temps de calcul de SLR^{-1} est essentiellement consacré à l'algorithme de Remez.

La méthode de type GRAPE utilisée dans ce test est celle mentionnée dans les chapitres précédents. Celle-ci consiste donc à déterminer un optimum d'une fonctionnelle à l'aide de son gradient. Différentes fonctions d'Ocatve (ou Matlab) dans la boîte à outils (Toolbox) permettent de résoudre des problèmes d'optimisation sans et avec contraintes. Dans notre cas, nous utilisons la fonction `fminunc` qui est une méthode d'optimisation sans contrainte : $\mathbf{x} = \text{fminunc}(\text{fun}, \mathbf{x0}, \text{options})$ commence d'un point $\mathbf{x0}$ et tente de trouver un minimum local de la fonction décrite dans `fun` avec les options d'optimisation spécifiés dans la structure `options`. Les valeurs des champs d'`options` peuvent être modifiées par appel à `optimset`, nous manipulons les valeurs de sorte que les itérations s'arrêtent au critère souhaité.

¹Nous utilisons la commande "CPU Time" qui retourne le temps CPU total (en secondes) utilisé par la fonction considérée depuis son lancement.

Chapitre 5. Algorithme de Shinnar-Le Roux

n	Temps de calcul du contrôle (CPU Time)		
	SLR ⁻¹	Remez	type GRAPE
32	0.01	0.01	2.952
64	0.03	0.02	4.680
128	0.12	0.08	8.216
256	0.20	0.16	14.768
512	0.27	0.22	28.048
1024	0.90	0.73	53.496
2048	3.44	2.80	105.276
4096	14.56	11.92	208.232
8192	90.98	76.38	413.060
16384	465.40	412.06	826.632

TABLE 5.1 : Temps de calcul du contrôle optimal à l'aide de SLR⁻¹ et méthode de type GRAPE pour différentes valeurs de n .

Appendix A

The Ernst angle solution

The goal of this appendix is to recall the main features of the Ernst angle solution. We consider the case of a spin $1/2$ particle subjected to a control field along the x - direction. We denote respectively by $S(y_s, z_s)$ and $M(y_m, z_m)$ the steady state and the measurement point of the control process. The S and the M points are connected by a field-free evolution:

$$\begin{cases} y_s = y_m e^{-\Gamma} \\ z_s = 1 - e^{-\gamma} + z_m e^{-\gamma} \end{cases} \quad (\text{A.1})$$

In this limiting case, the pulse sequence is reduced to an ideal δ - pulse, the radial coordinates r_s and r_m are therefore the same. We deduce that:

$$y_m^2 e^{-2\Gamma} + (1 - e^{-\gamma} + z_m e^{-\gamma})^2 = y_m^2 + z_m^2.$$

The figure of merit F is here given by y_m . A necessary condition to maximize F is $\frac{dy_m}{dz_m} = 0$. We obtain the following relation:

$$z_m - (1 - e^{-\gamma} + z_m e^{-\gamma})e^{-\gamma} = 0,$$

leading to:

$$z_m = \frac{1 - e^{-\gamma}}{e^{\gamma} - e^{-\gamma}},$$

which can be transformed into:

$$z_m = \frac{1}{1 + e^{\gamma}}.$$

It is then straightforward to show that:

$$y_m = \frac{e^{\Gamma}}{1 + e^{\gamma}} \sqrt{\frac{e^{2\gamma} - 1}{e^{2\Gamma} - 1}}.$$

We then deduce that the Ernst angle which characterizes the δ - pulse can be expressed as:

$$\cos(\theta) = \cos(\theta_m - \theta_s) = \frac{z_m z_s + y_m y_s}{y_m^2 + z_m^2}.$$

Using the preceding formulas, we obtain:

$$y_m^2 + z_m^2 = \frac{1}{(1 + e^\gamma)^2} \frac{1 - e^{2(\Gamma+\gamma)}}{1 - e^{2\Gamma}},$$

and

$$y_m y_s + z_m z_s = \frac{e^\Gamma}{(1 + e^\gamma)^2} \frac{e^{2\gamma} - 1}{e^{2\Gamma} - 1} + \frac{e^\gamma}{(1 + e^\gamma)^2}.$$

We arrive at:

$$\cos \theta = \frac{e^\gamma(1 - e^{2\Gamma}) + e^\Gamma(1 - e^{2\gamma})}{1 - e^{2(\Gamma+\gamma)}},$$

which can be simplified into:

$$\cos \theta = \frac{e^{-\Gamma} - e^\Gamma + e^{-\gamma} - e^\gamma}{e^{-(\gamma+\Gamma)} - e^{\gamma+\Gamma}},$$

and into the final formula:

$$\cos \theta = \frac{e^{-\gamma} + e^{-\Gamma}}{1 + e^{-\Gamma-\gamma}},$$

which is the well-known formulation of the Ernst angle solution.

Annexe B

Présentation de la méthode de Remez

L'algorithme de Remez prend pour entrées une fonction continue g , un intervalle $[a, b]$, un entier n et un paramètre réel strictement positif. Il calcule un polynôme p de degré inférieur ou égal à n qui approche le polynôme p^* de meilleure approximation de g sur $[a, b]$. On rappelle les deux théorèmes essentiels qui lui sont relatifs. On commence par le théorème de Weierstrass qui affirme qu'il est possible d'approcher uniformément une fonction continue par un polynôme :

Théorème B.1. (*Weierstrass*). On note $C([a, b])$, l'ensemble des fonctions continues de $[a, b]$ dans \mathbb{R} muni de la norme sup :

$$\|g\|_\infty = \max_{x \in [a, b]} |g(x)|.$$

Alors, l'ensemble des polynômes à coefficients réels est dense dans $C([a, b])$. En d'autres termes, pour toute fonction $f \in C([a, b])$, il existe une suite (p_n) de polynômes telle que $\|p_n - f\|_\infty \rightarrow 0$

Pour plus de détails, voir le livre de Cheney [133], où l'on peut trouver une preuve de ce résultat ainsi que des références sur son histoire. Le deuxième théorème est énoncé pour la première fois par Borel [143] :

Théorème B.2. *Théorème d'alternance (ou Propriété d'équioscillation)*. Soit g une fonction continue sur $[a, b]$. Un polynôme $p = x^{n+1} + \sum_{j=0}^n a_j x^j$ est de meilleure approximation pour g (parmi les polynômes de degré inférieur ou égal à n) si et seulement si il existe $n + 2$ points $x_0 < x_1 < \dots < x_{n+1}$ dans

$[a, b]$ et $\mu \in \mathbb{R}$ tels que :

$$\forall i = 0, \dots, n+1, p(x_i) - g(x_i) = (-1)^i \mu \quad (\text{B.1})$$

$$|\mu| = \|p - g\|_\infty. \quad (\text{B.2})$$

Corollaire B.3. (*Unicité du polynôme de meilleure approximation*). *Sous les mêmes hypothèses que le théorème B.2, le polynôme de meilleure approximation est unique.*

Voir [171] pour une preuve de ce corollaire.

L'équation (B.2) peut s'interpréter en disant que l'erreur maximale $\|p - g\|_\infty$ commise en remplaçant g par p est atteinte en $n + 2$ points de manière oscillante. Ce résultat forme la base de l'algorithme de Remez pour estimer p .

L'idée est la suivante : si les $n + 2$ points x_i de (B.1) étaient connus, il suffirait de résoudre le système linéaire de $n + 2$ équations

$$p(x_i) + (-1)^i \mu = g(x_i) \quad (\text{B.3})$$

pour trouver p et μ .

Rappelons que ce système à $n + 2$ inconnues : $n + 1$ coefficients et μ . Nous ne connaissons pas a priori les points x_i . Nous allons donc chercher à les estimer par approximations successives, sachant qu'ils sont des minimums ou maximums locaux de l'erreur $x \mapsto p(x) - g(x)$.

Pour initialiser la méthode de Remez, on prend un polynôme p_0 qui interpole g sur les $n + 1$ nœuds de Tchebychev de l'intervalle $[a, b]$. Comme l'erreur commise par p_0 s'annule en les $n + 1$ points d'interpolation, on peut trouver $n + 2$ points $x_0^0 < x_1^0 < \dots < x_{n+1}^0$ qui sont des minimums ou maximums de l'erreur $e_0 := p_0 - g$ sur chacun des intervalles délimités par ces points d'interpolation.

Maintenant que nous savons comment trouver le polynôme initial p_0 et les points associés $x_0^0, x_1^0, \dots, x_{n+1}^0$, nous pouvons passer au cœur de l'algorithme qui va les raffiner de manière itérative comme cela est présenté dans l'algorithme 2.

Des résultats sur la convergence de l'algorithme de Remez ont été discutés dans [133, 135].

Algorithme 2 : Supposons que nous disposions de p_k et des $n + 2$ points $x_0^k, x_1^k, \dots, x_{n+1}^k$ qui maximise localement l'erreur $p_k - g$. On calcule p_{k+1} et $x_0^{k+1}, x_1^{k+1}, \dots, x_{n+1}^{k+1}$ de la manière suivante :

1. On résout le système linéaire

$$p_{k+1}(x_i^k) + (-1)^i \mu_{k+1} = g(x_i^k), \quad 0 \leq i \leq n + 1,$$

pour déterminer p_{k+1} et μ_{k+1} .

2. **si** p_{k+1} est suffisamment proche de p_k **alors**

| l'algorithme s'arrête

sinon

| $e_{k+1} := p_{k+1} - g$ change $n + 2$ fois de signe et, dans chacun des $n + 2$ intervalle délimités par $n + 1$ racines de e_{k+1} dans $]a, b[$, on recherche en alternance un minimum ou un maximum de e_{k+1} . Ceci donne $n + 2$ points que nous appellerons $x_0^{k+1}, x_1^{k+1}, \dots, x_{n+1}^{k+1}$.

| **retour** à 1. avec $k = k + 1$.

Bibliographie

- [1] D.J. Tannor, R. Kosloff and S.-A. Rice. Coherent Pulse Sequence Induced Control of Selectivity of Reactions : Exact Quantum Mechanical Calculations. *J. Chem. Phys.* 85, 5805-5820 (1986).
- [2] H. Rabitz, M. Hsieh and C. Rosenthal. Quantum optimally controlled transition landscapes. *Science* 303, 1998 (2004).
- [3] R.-S. Judson and H. Rabitz. Teaching lasers to control molecules. *Phys. Rev. Lett.*, 68, 1500-1503, 1992.
- [4] T. Brixner, N.-H. Damrauer and G. Gerber. Femtosecond Quantum Control. *In Advances in Atomic, Molecular, and Optical Physics*, edited by B. Bederson and H. Walther, *Academic, San Diego, CA, 2001*, Vol. 46, pp 1-54.
- [5] I. Walmsley and H. Rabitz. Quantum physics under control. *Phys. Today*, 56, 43 (2003).
- [6] F. Shuang and H. Rabitz. Cooperating or fighting with control noise in the optimal manipulation of quantum dynamics. *J. Chem. Phys* 121 (19), 9270-9278 (2004).
- [7] F. Shuang, H. Rabitz and M. Dykman. Foundations for cooperating with control noise in the manipulation of quantum dynamics. *Phys. Rev. E* 75 (2), 021103 (2007).
- [8] P. Kumara and S.-A. Malinovskayaa. Quantum dynamics manipulation using optimal control theory in the presence of laser field noise. *Journal of Modern Optics* (2010).
- [9] D. Hocker, C. Brif, M.-D. Grace, A. Donovan, T.-S Ho, K.-W. M. Tibbetts, R. Wu, H. Rabitz. Characterization of control noise effects in optimal quantum unitary dynamics. *Phys. Rev.A* (2014).

-
- [10] K.-W. M. Tibbetts, C. Brif, M.-D. Grace, A. Donovan, D.-L. Hocker, T.-S. Ho, R.-B. Wu, H. Rabitz. Exploring the tradeoff between fidelity and time optimal control of quantum unitary transformations. *Phys. Rev. A* (2012).
- [11] B.-G. Klappauf, W.-H. Oskay, D.-A. Steck and M.-G. Raizen. Observation of Noise and Dissipation Effects on Dynamical Localization. *Phys. Rev. Lett.* 81, 1203-1206, 1998.
- [12] I.-R. Sola and H. Rabitz. The influence of laser field noise on controlled quantum dynamics *J. Chem. Phys.* 120, 9009-9016, 2004.
- [13] C. Brif, R. Chakrabarti, and H. Rabitz, Control of quantum phenomena *in Adv. Chem. Phys.*, Vol. 148, edited by S.-A. Rice and A.-R. Dinner (Wiley, New York, 2012) pp. 1-76.
- [14] G.-G. Balint-Kurti, S. Zou, and A. Brown, Optimal control theory for manipulating molecular processes. *in Adv. Chem. Phys.*, Vol. 138, edited by S. A. Rice (Wiley, New York, 2008) pp. 43-94.
- [15] Y. Ohtsuki, K. Nakagami, Y. Fujimura, W.-S. Zhu, and H. Rabitz. Quantum optimal control of multiple targets : Development of a monotonically convergent algorithm and application to intramolecular energy redistribution control. *J. Chem. Phys.*, 114, 8867-8876 (2001).
- [16] O.-M. Shir, M. Emmerich, T. Bäck, and M.-J.-J. Vrakking. The Application of evolutionary multi-criteria optimization to dynamic molecular alignment. *in Proceedings of IEEE Congress on Evolutionary Computation (CEC 2007)*, pp. 4108-4115, 2007.
- [17] R. Chakrabarti, R.-B. Wu, and H. Rabitz. Quantum multiobservable control. *Phys. Rev. A*, 77, 063425 (2008).
- [18] R. Chakrabarti, R.-B. Wu, and H. Rabitz. Quantum pareto optimal control. *Phys. Rev. A*, 78, 033414 (2008).
- [19] B. Li, G. Turinici, V. Ramakrishna, and H. Rabitz. Optimal Dynamic Discrimination of Similar Molecules Through Quantum Learning Control. *Journal of Physical Chemistry B* 106 (33) (2002) 8125-8131.
- [20] G. Turinici, V. Ramakrishna, B. Li, and H. Rabitz. Optimal discrimination of multiple quantum systems : Controllability Analysis. *J. Phys. A : Mathematical and General* 37 (1) (2003) 273-282.

BIBLIOGRAPHIE

- [21] Mohamed Belhadj, Julien Salomon, Gabriel Turinici. Ensemble controllability and discrimination of perturbed bilinear control systems on connected, simple, compact Lie groups. *European Journal of Control*, Lavoisier, 22, pp.23-29, 2015.
- [22] V. Chankong and Y.-Y. Haimes. Multiobjective Decision Making Theory and Methodology. *New York : North-Holland*, 1983.
- [23] R.-E. Steuer. Multiple Criteria Optimization : Theory, Computation and Application. *New York : Wiley*, 1986.
- [24] K.-M. Miettinen. Nonlinear Multiobjective Optimization. *Kluwer Academic Publ.*, Boston, London, Dordrecht, 1999.
- [25] M. Ehrgott. Multicriteria optimization *Second edition*. *Springer Berlin. Heidelberg*, 2005.
- [26] J.-A. Désidéri. Multiple-gradient descent algorithm (MGDA). *INRIA Research Report*, No. 6953, June 2009, <http://hal.inria.fr/inria-00389811>.
- [27] J.-A. Désidéri. Multiple-gradient descent algorithm (MGDA) for multiobjective optimization. *C. R. Acad. Sci. Paris, Ser. I*, 350 (2012) 313–318.
- [28] J.-A. Désidéri. Application of MGDA to domain partitioning. *INRIA Research Report*, No. 7968, May 2012, <http://hal.inria.fr/hal-00694039>.
- [29] J.-A. Désidéri. MGDA II : A direct method for calculating a descent direction common to several criteria. *INRIA Research Report*, No. 7422, April 2012, <http://hal.inria.fr/hal-00685762>.
- [30] G. Strang. Accurate partial difference methods I : Linear Cauchy problems. *Arch. Rat. Mech. and An.*, 12 :392–402, 1963.
- [31] W. Zhu and H. Rabitz. A rapid monotonically convergent iteration algorithm for quantum optimal control over the expectation value of a positive definite operator. *J. Chem. Phys.*, 109 :385–391, 1998.
- [32] A.-D. Bandrauk and H. Shen. Exponential split operator methods for coupled Schrödinger equations. *J. Chem. Phys.*, 99 :1185–1193, 1993.

-
- [33] T.-N. Truong, J.-J. Tanner, P. Bala, J. Andrew McCammon, D.-J. Kouri, B. Lesyng and D.-K. Hoffman. A comparative study of time dependent quantum mechanical wave packet evolution methods. *J. Chem. Phys.*, 96 :2077–2084, 1992.
- [34] J. Snyman. Practical Mathematical Optimization : An Introduction to Basic Optimization Theory and Classical and New Gradient-Based Algorithms. Applied Optimization. *Springer*, 2005. 2, 4
- [35] Ph.E. Gill, W. Murray and M.H. Wright. Practical Optimization. *Academic Press, New York, London*, 1986.
- [36] A. Zerbinati, J.-A. Désidéri and R. Duvigneau. Comparison between MGDA and PAES for Multi-Objective Optimization. *INRIA Research Report*, No. 7667, June 2011, <http://hal.inria.fr/inria-00605423>.
- [37] <http://www.gnu.org/software/octave/doc/interpreter/Quadratic-Programming.html>
- [38] F. Silva Leite, P.-E. Crouch, Controllability on classical Lie groups, *Mathematics of Control, Signals, and Systems* 1 (1988) 31–42.
- [39] V. Ramakrishna, M. Salapaka, M. Dahleh, H. Rabitz, A. Peirce, Controllability of Molecular-systems, *Physical Review A*, 51 (1995) 960–966.
- [40] D. D’Alessandro, Small time controllability of systems on compact Lie groups and spin angular momentum, *J. Math. Phys.* 42(9) (2001) 4488–4496.
- [41] F. Albertini, D. D’Alessandro, Notions of controllability for quantum mechanical systems, *Proceedings of the 40th IEEE Conference on Decision & Control*, Orlando, FL, 2 (2001) 1589–1594.
- [42] C. Altafini, Controllability of quantum mechanical systems by root space decomposition of $\mathfrak{su}(N)$, *Journal of Mathematical Physics* 43(5) (2002) 2051-2062.
- [43] G. Turinici, H. Rabitz, Wavefunction controllability in quantum systems, *Journal of Physics A : Mathematical and Theoretical*, 36 (2003) 2565-2576.

BIBLIOGRAPHIE

- [44] Online controllability calculator.
URL <https://www.ceremade.dauphine.fr/turinici/index.php/en/research/12-calculator>
- [45] K. Beauchard, J.-M. Coron and P. Rouchon. *Controllability issues for continuous-spectrum systems and ensemble controllability of Bloch equations*, Communications in Mathematical Physics, volume 296, Number 2, June 2010, p.525-557.
- [46] K. Beauchard and C. Laurent, *Local controllability of linear and nonlinear Schrödinger equations with bilinear control*, J. Math. Pures et Appl., Volume 94, Issue 5, November 2010, Pages 520-554
- [47] K. Beauchard, *Local controllability of a 1-D Schrödinger equation*, J. Math. Pures Appl. 84 (July 2005) 851-956.
- [48] K. Beauchard, *Controllability of a quantum particle in a 1D variable domain*, ESAIM Control Optim. Calc. Var. 14 (1) (2008) 105-147
- [49] K. Beauchard, J.-M. Coron, *Controllability of a quantum particle in a moving potential well*, J. Funct. Anal. 232 (2006) 328-389.
- [50] J.-M. Coron, *Control and Nonlinearity*, Mathematical Surveys and Monographs, vol. 136, 2007.
- [51] N. C. Nielsen, C. Kehlet, S. J. Glaser, and N. Khaneja, *Optimal Control Methods in NMR Spectroscopy*, Encyclopedia of Nuclear Magnetic Resonance (Wiley, New York, 2010)
- [52] C. Kehlet, A. C. Sivertsen, M. Bjerring, T. O. Reiss, N. Khaneja, S. J. Glaser and N. C. Nielson, *Improving solid-state NMR dipolar recoupling by optimal control*. J. Am. Chem. Soc. 126, 102002-10203 (2004)
- [53] L. Baudouin, J. Salomon, *Constructive solutions of a bilinear control problem for a Schrödinger equation*, Systems Control Lett. 57 (6) (2008) 453-464
- [54] L. Baudouin, O. Kaviani, J.-P. Puel, *Regularity for a Schrödinger equation with singular potential and application to bilinear optimal control*, J. Differential Equations 216 (2005) 188-222

-
- [55] L. Baudouin, *A bilinear optimal control problem applied to a time dependent Hartree–Fock equation coupled with classical nuclear dynamics*, Port. Math. (N.S.) 63 (1) (2006) 293–325
- [56] E. Cancès, C. Le Bris, M. Pilot, *Optimal bilinear control for a Schrödinger equation*, C. R. Acad. Sci. Paris 330 (Serie 1) (2000) 567–571
- [57] A. Borzi, and J. Salomon, and S. Volkwein, *Formulation and numerical solution of finite-level quantum optimal control problems*, JOURNAL OF COMPUTATIONAL AND APPLIED MATHEMATICS , 216 (1) (2008) 170-197
- [58] Kazufumi Ito and Karl Kunisch. *Lagrange multiplier approach to variational problems and applications* Society for Industrial and Applied Mathematics (2008)
- [59] J. W. Eaton, D. Bateman, S. Hauberg, R. Wehbring (2017). GNU Octave version 4.2.1 manual : a high-level interactive language for numerical computations.<https://www.gnu.org/software/octave/doc/v4.2.1/>
- [60] N. Jbili, K. Hamraoui, S. J. Glaser, J. Salomon, D. Sugny, *Optimal periodic control of spin systems : Application to the maximization of the signal to noise ratio per unit time*, Phys. Rev. A (2019)
- [61] C. Brif, R. Chakrabarti, and H. Rabitz, *Control of quantum phenomena : past, present and future* New J. Phys., **12**, 075008 (2010)
- [62] L. Pontryagin, *Mathematical theory of optimal processes* (Mir, Moscow, 1974)
- [63] A. Bryson and Y.-C. Ho, *Applied Optimal Control* (Hemisphere, Washington, DC, 1975)
- [64] B. Bonnard and D. Sugny, *Optimal control in space and quantum dynamics* (AIMS applied Math. Vol. 5, 2012)
- [65] V. Jurdjevic, *Geometric control theory* (Cambridge University Press, Cambridge, 1996)
- [66] P. Brumer and M. Shapiro, *Principles and Applications of the quantum control of molecular processes* (Wiley Interscience, 2003)
- [67] S. A. Rice and M. Zhao, *Optimal control of molecular dynamics* (John Wiley and sons, 2000)

BIBLIOGRAPHIE

- [68] D. D'Alessandro, *Introduction to quantum control and dynamics* (Chapman and Hall, Boca Raton, 2008)
- [69] N. Khaneja, R. Brockett and S. J. Glaser, Phys. Rev. A **63**, 032308 (2001)
- [70] M. Lapert, Y. Zhang, M. Braun, S. J. Glaser and D. Sugny, Phys. Rev. Lett. **104** (2010) 083001.
- [71] D. Sugny and C. Kontz, Phys. Rev. A **77**, 063420 (2008)
- [72] A. Garon, S. J. Glaser and D. Sugny, Phys. Rev. A **88**, 043422 (2013)
- [73] S. J. Glaser, U. Boscain, T. Calarco, C. Koch, W. Kockenberger, R. Kosloff, I. Kuprov, B. Luy, S. Schirmer, T. Schulte-Herbrüggen, D. Sugny and F. Wilhelm, Eur. Phys. J. D **69**, 279 (2015)
- [74] C. Brif, R. Chakrabarti and H. Rabitz, New J. Phys. **12**, 075008 (2010)
- [75] C. Altafini and F. Ticozzi, IEEE Trans. Automat. Control **57**, 1898 (2012)
- [76] D. Dong and I. A. Petersen, IET Control Theory A. **4**, 2651 (2010)
- [77] N. Khaneja, T. Reiss, C. Kehlet, T. Schulte-Herbrüggen and S. J. Glaser, J. Magn. Reson. **172**, 296 (2005)
- [78] 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
- [79] D. M. Reich, M. Ndong and C. P. Koch, J. Chem. Phys. **136**, 104103 (2012)
- [80] Y. Maday and G. Turinici, J. Chem. Phys. **118**, 8191 (2003)
- [81] W. Zhu, J. Botina, and H. Rabitz, J. Chem. Phys. **108**, 1953 (1998).
- [82] R. Kosloff, S. A. Rice, P. Gaspard, S. Tersigni, and D. Tannor, Chem. Phys. **139**, 201 (1989).
- [83] J. Somloi, V. A. Kazakovski, and D. J. Tannor, Chem. Phys. **172**, 85 (1993)

-
- [84] T. E. Skinner, T. O. Reiss, B. Luy, N. Khaneja, and S. J. Glaser, *J. Magn. Reson.* **172**, 17 (2005)
- [85] K. Kobzar, T. E. Skinner, N. Khaneja, S. J. Glaser, and B. Luy, *J. Magn. Reson.* **170**, 236 (2004)
- [86] K. Kobzar, T. E. Skinner, N. Khaneja, S. J. Glaser, and B. Luy, *J. Magn. Reson.* **194**, 58 (2008)
- [87] S. Conolly, D. Nishimura and A. Macovski, *IEEE Trans. Med. Imaging* **5**, 106 (1986)
- [88] M. Lapert, Y. Zhang, M. Janich, S. J. Glaser and D. Sugny, *Sci. Rep.* **2**, 589 (2012)
- [89] H. Liu and G.B. Matson, *Magn. Reson. Med.* **66**, 1254 (2011)
- [90] M. S. Vinding, I. I. Maximov, Z. Tosner and N. C. Nielsen, *J. Chem. Phys.* **137**, 5 (2012)
- [91] I. I. Maximov, M. S. Vinding, H. Desmond, N. C. Nielsen and N.J. Shah, *J. Magn. Reson.* **254**, 110 (2015)
- [92] D. Xu, K. F. King, Y. Zhu, G. C. McKinnon and Z.-P. Liang, *Magn. Reson. Med.* **59**, 547 (2008)
- [93] A. Massire, M. A. Cloos, A. Vignaud, D. L. Bihan, A. Amadon and N. Boulant, *J. Magn. Reson.* **230**, 76 (2013)
- [94] B. Bonnard, O. Cots, S. Glaser, M. Lapert, D. Sugny and Y. Zhang, *IEEE Trans. Autom. Control* **57**, 1957 (2012)
- [95] A. Sbrizzi, H. Hoogduin, J. V. Hajnal, C. A. van den Berg, P. R. Luijten, S. J. Malik, *Magn. Reson. Med.* **77**, 361 (2017)
- [96] E. Van Reeth, H. Ratiney, M. Tesch, D. Grenier, O. Beuf, S. J. Glaser, D. Sugny, *J. Magn. Reson.* **279**, 39 (2017)
- [97] J. Werschnik and E. K. U. Gross, *J. Phys. B* **40**, R175 (2007)
- [98] Y. Zhang, M. Lapert, M. Braun, D. Sugny, and S. J. Glaser, *J. Chem. Phys.* **134**, 054103 (2011)
- [99] D. Sugny, S. Vranckx, M. Ndong, N. Vaeck, O. Atabek and M. Desouter-Lecomte, *Phys. Rev. A* **90**, 053404 (2014)

BIBLIOGRAPHIE

- [100] P. E. Spindler, Y. Zhang, B. Endeward, N. Gershenson, T. E. Skinner, S. J. Glaser, and T. F. Prisner, *J. Magn. Reson.* **218**, 49 (2012)
- [101] T. E. Skinner, T. O. Reiss, B. Luy, N. Khaneja, and S. J. Glaser, *J. Magn. Reson.* **167**, 68 (2004)
- [102] G. Dridi, M. Lapert, J. Salomon, S. J. Glaser and D. Sugny, *Phys. Rev. A* **92**, 043417 (2015)
- [103] M. Lapert, G. Ferrini and D. Sugny, *Phys. Rev. A* **85**, 023611 (2012)
- [104] E. G. Gilbert, *SIAM J. Control and Optim.* **15**, 717 (1977)
- [105] D. S. Bernstein and E. G. Gilbert, *Optimal periodic control - The Pi-Test Revisited*, IEEE TRANSACTIONS ON AUTOMATIC CONTROL, **25** (1980) 673-684
- [106] J. E. Bailey, *Periodic operation of chemical reactors : A review*. Chem. Engrg. Comm., 1 (1973), pp., 111-124
- [107] F. J. M. Horn and R. c. lin, *Periodic process : a variational approach*, Indust. and Eng. Chem. proc. Design Dev., 6 (1967), pp. 21-30
- [108] F. Colonius, *Optimal periodic control* (Springer-Verlag, Berlin, 1988)
- [109] T. Bayen, F. Mairet, P. Martinon, and M. Sebbah, *Optimal Control Appl. Methods*, **36**, 750 (2015)
- [110] M. A. Bernstein, K. F. King and X. J. Zhou, *Handbook of MRI pulse sequences* (Elsevier, London, 2004)
- [111] R. R. Ernst, *Principles of Nuclear Magnetic Resonance in one and two dimensions* (International series of monographs on chemistry, Oxford, 1990)
- [112] M. H. Levitt, *Spin dynamics : Basics of Nuclear Magnetic Resonance* (Wiley, New York, 2008)
- [113] R. R. Ernst and W. A. Anderson, *Rev. Sci. Instrum.* **37**, 93 (1966)
- [114] K. Scheffler, *Magn. Reson. Med.* **49**, 781 (2003)
- [115] V. S. Deshpande, Y.-C. Chung, Q. Zhang, S. M. Shea, D. Li, *Magn. Reson. Med.* **49**, 151 (2003)

-
- [116] B. A. Hargreaves, S. S. Vasanaawala, J. M. Pauly and D. G. Nishimura, *Magn. Reson. Med.* **46**, 149 (2001)
- [117] C. Ganter, *Magn. Reson. Med.* **52**, 368 (2004)
- [118] C. Ganter, *Magn. Reson. Med.* **62**, 149 (2009)
- [119] P. W. Worters and B. A. Hargreaves, *Magn. Reson. Med.* **64**, 1404 (2010)
- [120] O. Bieri and K. Scheffler, *J. Magn. Reson. Imaging* **38**, 2 (2013)
- [121] K. Scheffler and S. Lehnhardt, *Eur. Radiol.* **13**, 2409 (2003)
- [122] M. Lapert, E. Assémat, S. J. Glaser and D. Sugny, *Phys. Rev. A* **90**, 023411 (2014)
- [123] M. Lapert, E. Assémat, S. J. Glaser and D. Sugny, *J. Chem. Phys.* **142**, 044202 (2015)
- [124] See Supplemental Material for a video about the optimal trajectories of the spins in the three cases of Fig. 4.5.
- [125] M. K. Riahi, J. Salomon, S. J. Glaser and D. Sugny, *Phys. Rev. A* **93**, 043410 (2016)
- [126] M. Shinnar, L. Bolinger, and J. S. Leigh, *Use of finite impulse response filters in pulse design*, in Proc. 7th SMRM, Aug. 1988, p. 695
- [127] M. Shinnar, L. Bolinger, and J. S. Leigh, *Synthesis of soft pulses with specified frequency responses*, in Proc. 7th SMRM, Aug. 1988, p. 1040
- [128] M. Shinnar, S. Eleff, H. Subramanian, and J. S. Leigh, *Resonance Med.* **12**(1989), pp. 74-80.
- [129] M. Shinnar, L. Bolinger, and J. S. Leigh, *The use of finite impulse response filters in pulse design*, *Magnet. Resonance Med.*, vol. 12, pp. 88-92, Oct 1989.
- [130] M. Shinnar and J. S. Leigh, *The application of spinors to pulse synthesis and analysis*, *Magnet. Resonance Med.*, vol. 12, pp. 93-98, Oct 1989.
- [131] P. Le Roux, *Exact synthesis of radio frequency waveforms*, in Proc. 7th SMRM, p. 1049, Aug. 1988

BIBLIOGRAPHIE

- [132] J. Pauly, P. Le Roux, D. Nishimura, A. Macovski, Parameter relations for the Shinnar-Le Roux selective excitation pulse design algorithm, *IEEE Trans. Med. Imaging* 10, 53–65 (1991).
- [133] E. W. Cheney, *Introduction to Approximation Theory*. AMS Chelsea Publishing (1982).
- [134] E. Ya. Remez, *General computational methods of Tchebycheff approximation*, Kiev, 1957 (Atomic Energy Translation 4491, pp. 1-85).
- [135] M. J. D. Powell. *Approximation Theory and Methods*. Cambridge University Press, 1981
- [136] L. R. Rabiner and B. Gold. *Theory and Application of Digital Signal Processing*. Prentice Hall, Englewood Cliffs, NJ, 1975.
- [137] J. M. Ball, J. E. Mardsen, M. Slemrod. Controlability for distributed bilinear systems. *SIAM J. Control and Optimization*, 20 (4) : 575–597, 1982.
- [138] J. McClellan, T. Parks, L. Rabiner, A computer program for designing optimum FIR linear phase digital filters, *IEEE Trans. on Audio and ElectroAcoustics* AU-21, 506–526 (1973).
- [139] J. H. McClellan and T. W. Parks. A unified approach to the design of optimum FIR linear-phase digital filters. *IEEE Trans. on Circuit Theory*, 20 :697–701, November 1973
- [140] T. W. Parks and C. S. Burrus. *Digital Filter Design*. John Wiley and Sons, 1987
- [141] L. R. Rabiner, J. H. McClellan, and T. W. Parks. FIR digital filter design techniques using weighted Chebyshev approximation. *Proc. IEEE*, 63(4) :595–610, April 1975.
- [142] P. P. Vaidyanathan and T. Q. Nguyen, *A simple proof of the alternation theorem*, *Conference Record of the Forty-First Asilomar Conference on Signals, Systems and Computers*, Vols 1-5, P. 1111+, 2007
- [143] E. Borel, *Leçons sur les fonctions de variables réelles*, chapitre 4 : représentation des fonctions continues. Gauthier-Villars, 1905.

-
- [144] H. Rabitz, G. Turinici, and E. Brown. *Control of quantum dynamics : Concepts, procedures and future prospects*. In Ph. G. Ciarlet, editor, Computational Chemistry, Special Volume (C. Le Bris Editor) of Handbook of Numerical Analysis, vol X , pages 833-887. Elsevier Science B.V., 2003.
- [145] G. Turinici and H. Rabitz, *Quantum wave function controllability*. Chem. Phys., 267 :1-9, 2001.
- [146] Yvon Maday, Julien Salomon, and Gabriel Turinici. Monotonic time-discretized schemes in quantum control. Numerische Mathematik, 103(2) :323-338, 2006.
- [147] Y. Maday, J. Salomon, and G. Turinici. Monotonic parareal control for quantum systems. SIAM Journal on Numerical Analysis , 45(6) :2468-2482, 2007.
- [148] S. W. Peter. *Polynomial-time algorithms for prime factorization and discrete logarithms on a quantum computer*. SIAM J. Comput., 26, 1997.
- [149] E. Sjöqvist. Trend : *A new phase in quantum computation*. Physics, 1 :35, 2008.
- [150] Peirce A P, Dahleh M A and Rabitz H 1988 Phys. Rev. A 37 4950
- [151] M. Le Bellac. *A short introduction to Quantum Information and Quantum Computation*. Cambridge University Press, 2006.
- [152] M. A. Nielsen and I. L. Chuang. *Quantum computation and quantum information*. Cambridge University Press, 2004.
- [153] A. Zeilinger D. Bouwmeester, A. K. Ekert. *The Physics of Quantum Information : Quantum Cryptography, Quantum Teleportation, Quantum Computation*. Springer, 2000.
- [154] G. Allaire. *Analyse numérique et optimisation : Une introduction à la modélisation mathématique et à la simulation numérique*. Mathématiques appliquées. École Polytechnique, 2005. 2, 4, 5, 22, 25, 26, 54
- [155] B. Bonnard and D. Sugny. *Time-minimal control of dissipative two-level quantum systems : The integrable case* , SIAM, Journal on control and optimization (2009).

BIBLIOGRAPHIE

- [156] B. Bonnard, M. Chyba and D. Sugny. *Time-minimal control of dissipative two-level quantum systems : The generic case*, I.E.E.E, transactions on automatic and control (2009).
- [157] D. Tannor, V. Kazakov, et V. Orlov, *Control of photochemical branching : Novel procedures for finding optimal pulses and global upper bounds Time Dependent Quantum Molecular Dynamics*. p. 347-360 (Plenum; 1992).
- [158] T.E. Skinner, T.O. Reiss, B. Luy, N. Khaneja, and S.J. Glaser, *J. Magn. Reson.* **163**, 8 (2003)
- [159] A. Messiah, *Mécanique Quantique*, Dunod, Paris (1960).
- [160] A. Messiah, *Quantum Mechanics*, Dover Publications, New-York (2000).
- [161] L. I. Schiff, *Quantum Mechanics*, McGraw-Hill, London (1969).
- [162] J. Hladik, *Les spineurs en physique*, Masson, Paris (1996).
- [163] J. Hladik, *Spinors in Physics*, Springer-Verlag, New-York (1999).
- [164] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, F. Laloë, *Mécanique Quantique*, Hermann, Paris (1997).
- [165] R. Burn, *Groups, a path to geometry*, Cambridge University Press, Cambridge (1985).
- [166] J. B. Kuipers, *Quaternions and Rotation Sequences : A Primer with Applications to Orbits Aerospace and Virtual Reality*, Princeton University Press, Princeton (2002).
- [167] P. Lounesto, *Clifford Algebras and Spinors*, Cambridge University Press, Cambridge (1997)
- [168] B. Blumich, H. W. Spiess, *Quaternions as a practical tool for the evaluation of composite rotations*, *J. Magn. Reson.* 61, 356–362 (1985).
- [169] A. M. Janich, R. F. Schulte, M. Schwaiger, J. S. Glaser. *Robust slice-selective broadband refocusing pulses*, *J. Magn. Reson.* 1, 126-135 (2011).

-
- [170] M. A. Janich, M. A. McLean, R. Noeske, S. J. Glaser, R. F. Schulte. Slice-selective broadband refocusing pulses for the robust generation of crushed spin-echoes, *J. Magn. Reson.* 223, 129-137 (2012)
- [171] G. W. Stewart, *Afternotes goes to Graduate School - Lectures on Advanced Numerical Analysis*. Society for Industrial and Applied Mathematics (SIAM), 1998.
- [172] A. V. Oppenheim and R. W. Schaffer. *Discrete-Time Signal Processing*. Prentice Hall, 1989.
- [173] T. W. Parks and C. S. Burrus. *Digital Filter Design*. John Wiley and Sons, 1987.
- [174] E. A Coddington and N. Levin, *Theory of ordinary differential equations*, McGraw-Hill (1995) .

RÉSUMÉ

Cette thèse porte sur des techniques de contrôle optimal pour des systèmes issus de la mécanique quantique et de la résonance magnétique nucléaire. Le travail présenté dans ce mémoire est divisé en quatre parties.

Dans la première partie, nous nous sommes intéressés au contrôle optimal simultané de l'équation de Schrödinger dépendante du temps via un champ laser qui représente le contrôle et que nous supposons soumis à une famille de perturbations. Ceci nous conduit à considérer un problème d'optimisation multi-critère via l'introduction d'un ensemble de fonctionnelles de coût à minimiser (au sens de Pareto).

Dans la deuxième partie, nous étudions le cadre mathématique de l'équation de Bloch périodique. Les conditions d'optimalité nécessaires du premier ordre sont étudiées. Plus précisément, nous prouvons l'existence d'une solution périodique, ainsi que l'existence d'un optimum.

Dans la troisième partie, nous présentons un nouvel algorithme d'optimisation pour les dynamiques périodiques. Cet algorithme est appliqué à la maximisation du signal sur bruit en résonance magnétique nucléaire. Le travail réalisé est ici avant tout numérique et algorithmique. Il s'agit à notre connaissance du premier algorithme de contrôle quantique permettant de considérer des dynamiques périodiques en temps. Nous avons montré l'efficacité de cette méthode pour le cas d'un système de spins homogènes et inhomogènes.

La dernière partie permet de présenter l'algorithme de Shinnar-Le-Roux (SLR) qui est une méthode d'optimisation analytique. Des résultats numériques ont été réalisés en comparant cette méthode avec une méthode itérative de type GRAPE introduite dans les chapitres précédents. Le résultat de cette comparaison donne un avantage à l'algorithme SLR.

MOTS CLÉS

Contrôle optimal, optimisation multi-critère, algorithme SLR, mécanique quantique, RMN, contrôle périodique

ABSTRACT

This thesis deals with optimal control techniques for systems related to quantum mechanics and nuclear magnetic resonance. The work presented in this memory is divided into four parts.

In the first part, we focus on to the simultaneous optimal control of the Schrödinger time-dependent equations via a laser field that represents a control term and that is assumed to be submitted to a family of perturbations. This lead us to consider a multi-criteria optimization problem through the introduction of a set of cost functional to be minimized (in the sense of Pareto).

In the second part, we study the mathematical framework of the periodic Bloch equation. The necessary first-order optimality conditions are derived. More precisely, we prove the existence of a periodic solution, as well as the existence of an optimum.

In the third part, we present a new optimization algorithm for periodic dynamics. This algorithm is applied to the maximization of SNR in NMR. The work here is more of an numerical and algorithmic nature. To our knowledge, this is the first quantum control algorithm to consider periodic dynamics in time. We have shown the efficiency of this method in the case of a homogeneous and inhomogeneous spin system.

The last part presents the Shinnar-Le-Roux algorithm (SLR), which is an analytical optimization method. Numerical results were obtained by comparing this method with an iterative grape-type method introduced in previous chapters. The result of this comparison gives an advantage to the SLR algorithm.

KEYWORDS

Optimal control, multi-criteria optimization, SLR algorithm, quantum mechanics, NMR, periodic control