

---

# O uso de derivada fracionária na descrição do decaimento não exponencial

Nelson H. T. Lemes<sup>1†</sup>, José Paulo C. dos Santos<sup>2</sup>, João P. Braga<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Docente do Instituto de Química, Universidade Federal de Alfenas

<sup>2</sup> Docente do Instituto de Ciências Exatas, Universidade Federal de Alfenas

<sup>3</sup> Docente do Departamento de Química, Universidade Federal de Minas Gerais

**Resumo:** No processo de decaimento radioativo, a quantidade de espécies instáveis que permanecem no tempo  $t$  é dada por uma equação diferencial de primeira ordem, conhecida como lei de decaimento exponencial. Atualmente existem evidências de um decaimento não exponencial em longos tempos, quando o número de espécies presente decai suavemente, tal como  $1/t^n$ . O objetivo deste trabalho foi considerar a equação diferencial generalizada com ordem não inteira, da qual foi possível descrever os dados experimentais em ambas regiões: exponencial e não-exponencial região. Este comportamento, obtido do cálculo fracional, está de acordo com dados experimentais recentes da literatura.

**Palavras-chave:** Decaimento não-exponencial; cálculo fracionário; função de Mittag-Leffer.

**Abstract:** In a radioactive decay, the amount of unstable species that remains at time  $t$  is given by a differential equation with integer order, known as exponential law. Currently, there are evidence of nonexponential nuclear decay at long time, when the number of species present decays slowly such as  $1/t^n$ . The objective of this work was to consider a generalized differential equation with noninteger order, it was able to describe the experimental data in both regions: exponential and nonexponential region. This behavior, obtained by fractional calculus, in agreement with recent experimental data in the literature.

**Keywords:** Nonexponential decay; fractional calculus; Mittag-Leffer function.

## Introdução

A radiação- $\alpha$ , emitida por um núcleo pesado de Urânio 238, foi descoberta em 1899 por Rutherford (RUTHERFORD, 1899). O processo, descrito pela equação  $\frac{A}{Z}X \rightarrow \frac{A-4}{Z-2}Y + \alpha$ , teve o primeiro tratamento teórico dado em 1928, quando Gamow descreveu o decaimento- $\alpha$  como o tunelamento de uma partícula através de uma barreira de potencial (GAMOW, 1928). Este processo quântico é de natureza probabilística, neste caso, não se pode dizer qual partícula da amostra irá decair, mas pode-se acompanhar o número de núcleos pesados presentes na amostra ao longo do tempo. O número de núcleos que permanecem sem desintegrar é dado por uma equação diferencial ordinária de primeira ordem,  $dN/dt = -\lambda N$ , em que  $\lambda$  é denominada constante de decaimento. Esta equação diferencial tem como solução uma função exponencial,  $N(t) = N(0)e^{-\lambda t}$ . Este comportamento exponencial para o decaimento radioativo é bem conhecido (MERZBACHER, 1961) e estabelecido (NOVKOVIĆ et al., 2006; NORMAN et al., 1988; AVIGNONE, 1988; GODOVIKOV, 2004; SKOROBOGATOV, 2006) na literatura. Entretanto trabalhos recentes (ASTON, 2012; NICOLAIDES, 2013; ASTON, 2013; KELKAR, 2004) colocam dúvidas na validade desta lei, quando se observa o processo de decaimento por um número grande de tempos de meias-vidas.

---

<sup>†</sup>Autor correspondente: [nelson.lemes@unifal-mg.edu.br](mailto:nelson.lemes@unifal-mg.edu.br)

O trabalho de Kelkar, Nowakowski e Khemchandani (2004) apresenta evidências que para tempos longos de observação o decaimento é mais suave, com uma dependência proporcional a  $1/t^n$ , que se denomina lei de potência. Esta mudança de comportamento pode trazer consequências, por exemplo na datação de materiais pelo uso do isótopo de  $^{14}\text{C}$ , em que é assumido um decaimento exponencial ao longo de todo tempo de decaimento. A referência (ASTON, 2012) cita este aspecto como uma possível explicação de algumas discrepâncias para datações de carbono por decaimento radioativo em comparação com resultados obtidos de outras técnicas.

A controvérsia da lei de decaimento radioativo é antiga (NOVKOVIĆ et al., 2006; NORMAN, et al., 1988; AVIGNONE, 1988; GODOVIKOV, 2004; SKOROBOGATOV, 2006; PERES, 1980; MERZBACHER, 1961) e existe por duas razões: uma relacionada à qualidade dos dados experimentais e outra ao tratamento teórico dado. Em primeiro lugar, dados experimentais acurados, em tempos de observação tão longos, são difíceis de serem obtidos no laboratório e escassos na literatura científica. Por exemplo, para o isótopo radioativo de  $^8\text{Be}(2+)$  o desvio do comportamento é esperado quando o tempo de observação é superior a 30 tempos de meias-vidas e a intensidade esperada do sinal experimental é da ordem  $10^{-7}$  vezes do sinal inicial (KELKAR et al., 2004). Em segundo lugar, não existe uma previsão teórica rigorosa sobre o assunto neste limite de tempo (MERZBACHER, 1961). A referência (PERES, 1980) demonstra que a teoria quântica, dentro de certas aproximações, prevê variações do decaimento exponencial para tempos muito pequenos e muito longos de observação. Motivado por esta controvérsia, este trabalho explora o uso de uma equação diferencial de ordem fracionária, cuja solução, dada em termos da função de Mittag-Leffler, tem um comportamento assintótico que se ajusta qualitativamente aos dados de decaimento radioativo, em pequenos (lei de decaimento exponencial) e longos (lei de potência) tempos de observação.

Esta abordagem foi usada recentemente na predição do tempo de meia-vida, utilizando constantes de decaimento obtidas diretamente de cálculos quânticos sem correções empíricas (ÇALIK et al., 2013). O trabalho de Çalik (2013) utilizou 100 termos na série infinita de Mittag-Leffer, no entanto, para determinados valores de  $\alpha$  e  $\lambda$  esta quantidade de termos não garante uma convergência adequada. Portanto, no presente trabalho utilizou-se um algoritmo desenvolvido por Podlubny para o cálculo da função de Mittag-Leffer, em que a acurácia desejada pode ser controlada (PODLUBNY, 2013). No trabalho realizado por Çalik (2013) a ordem fracionária foi otimizada para reproduzir o tempo de meia-vida experimental, no entanto, seus dados não são consistentes com o esperado nas regiões de pequenos e longos tempos de observação.

No presente estudo procura-se, pelo uso do modelo fracionário, descrever a curva de decaimento –  $N \times t$  – para pequenos e longos tempos de observação.

## Metodologia

Como discutido na introdução, em geral, o decaimento radioativo é bem descrito por uma equação diferencial de ordem inteira (NOVKOVIĆ, et al., 2006; NORMAN et al., 1988).

$$\frac{d}{dt}N(t) = -kN(t), \quad (1)$$

cujas soluções são dadas por  $N(t) = N(0)e^{-kt}$  em que  $N(t)$  é o número de partículas presentes no tempo  $t$  e  $k$  a constante de decaimento. Este resultado é bem conhecido e denominado como lei de decaimento exponencial. São vários os exemplos na literatura em que, dentro do limite do erro experimental, nenhum desvio é observado em relação a lei de decaimento exponencial, como para o decaimento- $\beta$  do  $^{56}\text{Mn}$  (NORMAN et al., 1988) e do  $^{198}\text{Au}$  (NOVKOVIĆ et al., 2006). Nos dois estudos, o decaimento foi acompanhado por um longo tempo de 30 e 45 meias-vidas, respectivamente.

Por outro lado, existem resultados para o decaimento- $\alpha$  do  $^8\text{Be}$  (KELKAR et al., 2004), que apontam fortes evidências para um decaimento não-exponencial, em tempos superiores a 30 meias-vidas para o  $^8\text{Be}$ . Neste caso, observa-se um desvio do comportamento exponencial para longos tempos de observação quando o decaimento passa a ser mais suave e governado por uma lei de potência. Na tentativa de descrever o processo para pequenos e longos tempos de observação, o presente estudo sugere uma generalização da Equação (1) para uma ordem não inteira, tal como

$$D_t^\alpha N(t) = -\lambda N(t) \quad (2)$$

em que  $\lambda = k^\alpha$ ,  $N(0) = 1$  e  $0 \leq \alpha \leq 1$ . A Equação (2) é uma equação diferencial de ordem fracionária.

## Derivada fracionária segundo Caputo

A origem do cálculo fracionário remonta ao final do século XVII com a discussão entre Leibniz e L'Hospital sobre o significado de  $d^{1/2}/dx^{1/2}$ . Desta época até o momento atual, ilustres matemáticos como Euler, Lagrange, Laplace, Fourier, Abel, dentre outros, têm contribuído para o desenvolvimento da teoria de cálculo fracionário. Para mais detalhes sobre o assunto veja o trabalho de dos Santos (dos SANTOS, 2012) e as referências contidas neste trabalho.

Para o entendimento do modelo proposto neste trabalho apresenta-se inicialmente uma motivação para a definição de uma derivada fracionária, partindo da definição de integral fracionária. Assim, considerando o operador integral  $(Jf)(t)$  como

$$(Jf)(t) = \int_0^t f(s)ds \quad (3)$$

por outro lado, aplicando  $m$  vezes o operador obtemos a expressão

$$(J^m f)(t) = (JJJJ\dots JJf)(t) = \frac{1}{\Gamma(m)} \int_0^t (t-s)^{m-1} f(s)ds \quad (4)$$

em que  $\Gamma(m)$  é a função Gama de Euler. A expressão acima é bem definida para  $m$  não inteiro o que leva a definição da integral fracionária de Riemann-Liouville  $(J^\alpha f)(t)$  pela Equação (4), em que  $m = \alpha$  é a ordem fracionária (dos Santos).

A integral fracionária Riemann-Liouville será útil na definição de uma expressão para a derivada fracionária se levar em conta o teorema fundamental do cálculo, em que

$$(DJf)(t) = f(t) \quad (5)$$

Neste caso, por indução finita, tem-se (dos Santos, 2012)

$$(D^n J^n f)(t) = f(t) \quad (6)$$

em que  $n$  é um valor positivo e inteiro. Considerando  $n - \alpha$  na integral fracionária, tem-se

$$(D^n J^{n-\alpha} f)(t) = (D_t^\alpha f)(t) \quad (7)$$

A expressão acima é bem definida para  $n$  inteiro maior que  $\alpha$  e para qualquer valor de  $\alpha$  positivo. Portanto, pode-se usar a Equação (7) como motivação para definir a derivada fracionária  $(D^\alpha f)(t)$ , como

$$(D_t^\alpha f)(t) = (J^{n-\alpha} D^n f)(t) = \frac{1}{\Gamma(n-\alpha)} \int_0^t \frac{f^{(n)}(s)ds}{(t-s)^{\alpha-n+1}} \quad (8)$$

conhecida como derivada fracionária de ordem  $\alpha$  segundo Caputo (dos Santos, 2012), em que a ordem entre derivada e integral foi alterada em relação a Equação (7). Na Equação (8) tem-se

que  $f^{(n)}(s) = d^n f/ds^n$ . Assim, a integral que define a derivada fracionária segundo Caputo é a integral de Abel.

### Equação diferencial de ordem fracionária

A transformada de Laplace representa uma estratégia importante para a determinação das soluções de equações diferenciais fracionárias, assim como para o caso de equações diferenciais de ordem inteira. O método consiste em aplicar o operador  $\mathfrak{L}$  em ambos os lados da Equação (2), então

$$\mathfrak{L}[(D_t^\alpha N)(t)] = -\lambda \mathfrak{L}[N(t)] \quad (9)$$

Considerando que

$$\mathfrak{L}[(D_t^\alpha N)(t)] = s^\alpha \mathfrak{L}[N(t)] - s^{\alpha-1} N(0) \quad (10)$$

um resultado conhecido da literatura (dos Santos, 2012), tem-se

$$\mathfrak{L}[N(t)] = \frac{s^{\alpha-1}}{s^\alpha - \lambda} \quad (11)$$

para  $N(0) = 1$ . Neste caso, a solução é dada pela função cuja transformada de Laplace é  $s^{\alpha-1}/(s^\alpha - \lambda)$ . Considerando que

$$\mathfrak{L}[E_\alpha(-\lambda t^\alpha)] = \frac{s^{\alpha-1}}{s^\alpha + \lambda} \quad (12)$$

outro resultado conhecido da literatura, tem-se finalmente,

$$N(t) = E_\alpha(-\lambda t^\alpha) \quad (13)$$

em que  $E_\alpha(x)$  é a função de Mittag-Leffer com um parâmetro.

### Função de Mittag-Leffer

A função de Mittag-Leffer

$$E_\alpha(x) = \sum_{k=0}^{\infty} \frac{x^k}{\Gamma(\alpha k + 1)} \quad (14)$$

tem um papel central no cálculo de ordem fracionária e propriedades assintóticas interessantes para descrição do fenômeno de decaimento radioativo (MAINARDI, 2013).

$$E_\alpha(-t^\alpha) \approx \begin{cases} \exp\left[-\frac{t^\alpha}{\Gamma(1+\alpha)}\right], & \text{para } t \rightarrow 0 \\ \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^{n-1} \frac{t^{-\alpha n}}{\Gamma(1+\alpha n)} \approx \frac{t^{-\alpha}}{\Gamma(1-\alpha)}, & \text{para } t \rightarrow \infty \end{cases} \quad (15)$$

O comportamento assintótico da função de Mittag-Leffer é similar ao observado por Kelkar (KELKAR; NOWAKOWSKI; KHEMCHANDANI, 2004) para a descrever o decaimento- $\alpha$  do  ${}^8\text{Be}$ . Portanto, a função de Mittag-Leffer é adequada para interpolar o decaimento exponencial em tempos muito pequenos, enquanto que também é capaz de interpolar um decaimento mais suave para tempos longos de observação. O modelo proposto também se ajusta aos casos de decaimento puramente exponencial, quando  $\alpha=1$  tem-se  $E_{\alpha,1}(x) = e^x$  e o resultado previsto pela Equação (1).

## Resultados e discussões

### Decaimento não-exponencial

A Figura 1 ilustra o comportamento assintótico da solução da Equação (2) para os valores:  $\lambda = 0,8\text{ua}^{-1}$  e  $\alpha = 0,999$ . Neste caso, para o gráfico de  $\ln(N) \times t^\alpha$  espera-se uma reta, em tempos pequenos de observação, com inclinação  $-\lambda^\alpha/\Gamma(1+\alpha) = -0,34774$ . Para tempos longos de observação, espera-se uma reta, para o gráfico de  $\ln(N) \times \ln(t^\alpha)$ , com inclinação  $-1$ . Os valores encontrados foram de  $-0,34752$  e  $-1,0083$ , respectivamente. Neste caso, o tempo de meia-vida é de aproximadamente 1 ua (unidade arbitrária) e a mudança de comportamento ocorre em aproximadamente  $\tau = 11$  ua, que corresponde a aproximadamente 10 vezes o tempo de meia-vida. Observa-se, que a mudança do comportamento ocorre depois que o número de partículas decai por um fator de  $10^5$  vezes. Uma importante questão, ainda em aberto, seria a previsão teórica de quando ocorre esta mudança e qual a relação de  $\tau$  com os parâmetros  $\lambda$  e  $\alpha$ .

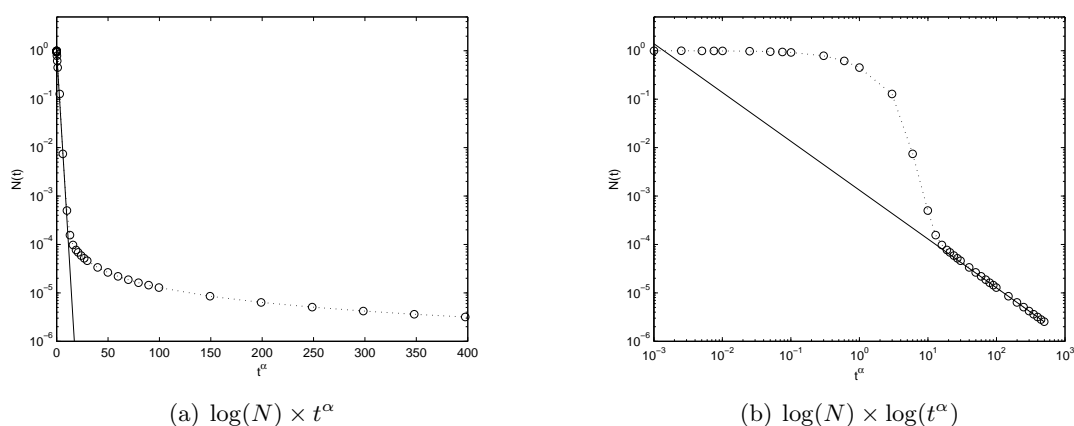


Figura 1: Comportamento assintótico da solução prevista pela Equação (2).

Para o processo  ${}^8\text{Be}(2^+) \rightarrow 2\alpha$  a mudança de comportamento é esperada para um tempo de 30 vezes o tempo de meia-vida, isto significa que o número de partículas já decaiu por um fator de  $e^{30} \approx 10^{15}$  vezes. Conforme destacado anteriormente, este fator é um complicador na comprovação experimental do desvio do decaimento exponencial para tempos tão longos. Qualitativamente observa-se que quanto mais próximo de 1 assumir o valor de  $\alpha$  menor a fração de núcleos sem decair no momento da mudança de comportamento, isto significa que para o  ${}^8\text{Be}(2^+)$  o valor de  $\alpha$  deve ser muito próximo de 1. No entanto, o cálculo da função de Mittag-Leffer, para valores de  $\alpha$  próximos de 1, exige uma acurácia maior e, portanto, maior tempo de computação, o que dificultou a interpolação dos dados do  ${}^8\text{Be}(2^+)$ . Neste ponto, é importante destacar a necessidade de implementação de rotinas mais eficientes para o cálculo da função de Mittag-Leffer que permitam este ajuste. Valores de  $\alpha$  muito diferentes de 1, como os encontrados por (ÇALIK et al., 2013), não são compatíveis com o comportamento do processo. Estudos preliminares mostraram que a interpolação dos dados com funções de Mittag-Leffer de dois –  $E_{\alpha,\beta}(x)$  – foram promissoras dando maior flexibilidade no expoente encontrado para a lei de potência, e serão melhor explorados em trabalhos futuros.

## Conclusão

Neste trabalho uma equação de ordem fracionária  $D_t^\alpha N(t) = -\lambda N(t)$  foi usada para descrever o processo de decaimento radioativo. Neste caso, a solução, em termos da função de Mittag-Leffer, apresentou o comportamento assintótico adequado para interpolar os dados de decaimento radioativo em pequenos e grandes tempos de observação. Para pequenos tempos de observação o

modelo prevê um decaimento exponencial e um decaimento mais suave para um número grande de tempos de meias-vidas, este comportamento esta de acordo com evidências experimentais recentes.

## Agradecimentos

Os autores agradecem os recursos fornecidos pela CNPq e FAPEMIG.

## References

ÇALIK, A. E.; ERTIK, H.; ÖDER, B.; SIRIN, H. A fractional calculus approach to investigate the alpha decay process. *Int. J. Mod. Phys. E* v.22, n.7, 145-157. 2013.

ASTON, P. J. Is radioactive decay really exponential? *EPL* v.97, p. 52001, 2012.

ASTON, P. J. Reply to the comment by Cleanthes A. Nicolaides. *EPL* v. 101, p. 42002, 2013.

AVIGNONE, F. T.; Comment on 'Test of the experimental decay law at short and long times'. *Phys. Rev. Lett.* v. 61, n. 22, p. 2264, 1988.

DOKOUMETZIDIS, A.; MACHERAS, P. Fractional kinetics in drug absorption and disposition process. *J. Pharmacokinetics Pharmacodynamics* v. 36, p. 165-178, 2009.

GAMOW, G. Zur quantentheorie des atomkernes. *Z. Phys.* v. 51, n. 3(4), p. 204-212, 1928.

GODOVIKOV, S. K. Nonexponential  $^{125m}\text{Te}$  radioactive decay. *JETP Letters* v. 79, n. 5, p. 249-253, 2004.

KELKAR, N.G.; NOWAKOWSKI, M.; KHEMCHANDANI, K.P. Hidden evidence of nonexponential nuclear decay. *Phys. Rev. C*, v. 70, p. 024601, 2004.

MAINARDI, F. On some properties of the Mittag-Leffler function  $E_\alpha(-t^\alpha)$  completely monotone for  $t > 0$  with  $0 < \alpha < 1$ . 2013. URL [arXiv:1305.0161v1 \[math-ph\] 1May2013](https://arxiv.org/abs/1305.0161v1).

MERZBACHER, E. *Quantum Mechanics*. New York: John Wiley, 621p, 1961.

NICOLAIDES, C. A. Comments on 'Is radioactive decay really exponential?' *EPL* v. 101, p. 42001, 2013.

NORMAN, E. B.; GAZES, S. B.; CRANE, S. G. ; BENNETT, D. A. Test of the experimental decay law at short and long times. *Phys. Rev. Lett.* v. 60, n. 22, p. 2246-2249, 1988.

NOVKOVIĆ, D.; NADDERD, L.; KANDIĆ, A.; VUKANAC, I.; DURASEVIĆ, M.; JORDANOV, D. Testing the exponential decay law of gold  $^{198}\text{Au}$ . *Nucl. Instr. and Meth. A* v. 446, p. 477-480, 2006.

PERES, A. Nonexponential decay law. *Ann. Phys.* v. 129, n. 1, p. 33-46, 1980.

PODLUBNY, I., Rotina do MATLAB para calcular a função de Mittag-Leffler com a acurácia desejada. Disponível em: <http://www.mathworks.com/matlabcentral/fileexchange/8738-mittag-leffler-function>.

Acesso em: 13 fev. 2013.

POOSEH, S.; RODRIGUES, H. S.; TORRES, D. F. M. Fractional derivatives in Dengue epidemics. 2011. URL [arXiv:1108.1683v1 \[math-CA\]](https://arxiv.org/abs/1108.1683v1) 8Aug2011.

RIDA, S. Z.; EL-SAYED, A. M. A.; ARAFA, A. A. M. Effect of bacterial memory dependent growth by using fractional derivatives reaction-diffusion chemotactic model. *J. Stat. Phys.*, v. 140, p. 797–811, 2010.

RUTHERFORD, E. Uranium radiation and the electrical conduction produced by it. *Phil. Mag.*, v. 47, n. 284, p. 109-163, 1899.

dos SANTOS, J. P. C.; CARDOSO, A.; FERREIRA, E. C.; FRANCO, J. C.; SOUZA Jr., J. C. Cálculo de Ordem Fracionária e Aplicações. *Sigmae*, v.1, n.1, p. 18-32, 2012.

SKOROBOGATOV, G. A.; EREMIN, V. V. On the paper “Nonexponential  $^{125m}\text{Te}$  radioactive decay”. *JETP Letters* v. 83, n. 1, p. 46–48, 2006.

SOBOL, I. M. *A primer for the Monte Carlo*. London: CRC Press, 107p, 1994.