

EXPLORANDO A ORDEM FRACIONÁRIA COMO MÉTRICA DE COMPLEXIDADE EM MATERIAIS IRRADIADOS – O CASO DO PVDC

Bruno Manuel Ribeiro Alves (Engenheiro Técnico) E-mail: b.bruno.a@gmail.com

Resumo: A interação entre a radiação e a matéria envolve fenômenos que incluem de processos atômicos até a alterações estruturais macroscópicas. Isto exige modelos que capturem memória de estados anteriores, a não localidade e o comportamento anômalo. O cálculo fracionário, que é uma generalização do cálculo clássico, prevê-se ser uma ferramenta promissora para a descrição de sistemas complexos, especialmente no contexto de materiais poliméricos e meios desordenados. Neste trabalho, investiga-se a aplicação da derivada fracionária de Grünwald–Letnikov ao logaritmo do coeficiente de atenuação linear (LAC) do polímero PVDC. Pretende-se avaliar a ordem fracionária como uma métrica quantitativa de complexidade radiológica. Graças à obtenção de dados via Phy-X, um modelo fracionário do tipo $\text{Log (LAC)} = a \cdot D^\alpha (\text{Log (LAC)}) + b$ é ajustado. Os resultados revelam que a ordem fracionária $\alpha = 0,001$, tem comportamento local e ausência de memória fracionária significativa, o ajuste apresenta elevada precisão, ($R^2 = 0,999997$, RMSE = 0,00528 e critérios de informação AIC e BIC extremamente baixos), o que reflete elevada parcimônia. Embora os resíduos não obedeçam aos pressupostos de normalidade e de independência, o comportamento pertence a modelos quase-perfeitos aplicados a materiais altamente homogêneos. A análise confirma que o PVDC se situa no extremo inferior de uma escala de complexidade radiológica baseada em α , podendo vir a ser tratado como um material de referência. É proposta, uma taxonomia fracionária para classificação de materiais irradiados, cujo potencial para aplicação futura em metais pesados, compósitos e sistemas com histerese é bastante interessante.

Palavras-chave: cálculo fracionário, PVDC, coeficiente de atenuação linear, complexidade radiológica, Grünwald–Letnikov.

EXPLORING THE FRACTIONAL ORDER AS A COMPLEXITY METRIC IN IRRADIATED MATERIALS – THE PVDC STUDY CASE

Abstract: The interaction between radiation and matter involves phenomena ranging from atomic-scale processes to macroscopic structural changes, requiring models capable of capturing memory, nonlocality, and anomalous behavior. Fractional calculus, a generalization of classical calculus, has emerged as a promising tool for describing complex systems, particularly in polymeric materials and disordered media. In this work, we investigate the application of the Grünwald–Letnikov (GL) fractional derivative to the logarithm of the linear attenuation coefficient (LAC) of the PVDC polymer, with the aim of evaluating the fractional order as a quantitative metric of radiological complexity. Using attenuation data obtained from Phy-X, a fractional model of the form $\text{Log (LAC)} = a \cdot D^\alpha (\text{Log (LAC)}) + b$ is fitted. The results show that the optimal fractional order $\alpha = 0.001$ corresponds to a local behavior with no significant fractional memory. The model exhibits high accuracy, with $R^2 = 0.999997$, RMSE = 0.00528, and extremely low AIC and BIC values, reflecting strong parsimony. Although the residuals do not satisfy the assumptions of normality and independence, such behavior is characteristic of near-perfect models applied to highly homogeneous materials. The analysis confirms that PVDC lies at the lower bound of a radiological complexity scale based on α and may therefore be treated as a reference material. Accordingly, a fractional-based taxonomy for classifying irradiated materials is proposed, with potential applications to heavy metals, composites, and systems exhibiting hysteresis.

Keywords: fractional calculus, PVDC, linear attenuation coefficient, radiological complexity, Grünwald–Letnikov.

1. Introdução

A modelagem da interação da radiação com a matéria é um desafio na engenharia de materiais aplicada à proteção radiológica, pois requer descrições rigorosas de fenômenos que vão de processos atômicos até modificações estruturais e funcionais na

escala macroscópica. A resposta de um material à radiação determina-se por fatores como a natureza e energia das partículas incidentes, os mecanismos energéticos, a formação de defeitos e evolução temporal assim como as alterações posteriores nas propriedades mecânicas, térmicas, elétricas e químicas.

Os materiais reais são heterogêneos, anisotrópicos e têm comportamentos não linear. Este comportamento limita a aplicação de modelos clássicos baseados em parâmetros médios ou em aproximações contínuas simplificadas. Assim, abordagens avançadas, como é o exemplo da modelagem fracionária destacam-se pela capacidade de captura da complexidade intrínseca dos sistemas irradiados e de representar, de forma fiel, os mecanismos físicos subjacentes.

Uma das mais importantes métricas que se utiliza para descrever a probabilidade de absorção ou de dispersão de fótons em um material, é o coeficiente de atenuação linear (LAC). O LAC utiliza-se amplamente em dosimetria, proteção radiológica, caracterização de polímeros e análise estrutural (Attix, 1986; Knoll, 2010) e os cálculos dos seus valores baseiam-se em ferramentas como o XCOM ou Phy-x, que disponibilizam coeficientes de atenuação calculados a partir de bases de dados experimentais. Os valores obtidos constituem uma descrição contínua do comportamento do coeficiente de atenuação linear em função dos principais processos de interação tais como o efeito fotoelétrico, espalhamento Compton e a produção de pares (Hubbell & Seltzer, 1995).

O cálculo fracionário tornou-se nos últimos anos uma ferramenta útil para modelagem de sistemas que exibam efeitos de memória, não-localidade e comportamento anômalo, que se observam em materiais heterogêneos, poliméricos e meios desordenados (Sun *et al.*, 2018; Tarasov, 2011). Em acordo com o teorema fundamental do cálculo, o cálculo fracionário é uma generalização entre o cálculo diferencial e o integral clássico (Mainardi, 2010; Tarasov, 2011). Neste sentido, a derivada fracionária de Grünwald – Letnikov, destaca-se com a formulação discreta para dados tabulados (Li & Zeng, 2015; Podlubny, 1999) cuja equação utilizada neste trabalho expressa-se na equação (1).

$$D_{GL}^{\alpha} f(k) = \sum_{j=0}^k (-1)^j \frac{\Gamma(\alpha+1)}{\Gamma(j+1)\Gamma(\alpha-j+1)} f(k-j) \quad (1)$$

A aplicação da equação (1) ao logaritmo dos valores de LAC resulta na equação (2). A equação (2) combina a simplicidade matemática, estabilidade numérica e capacidade de incorporar efeitos de memória através da derivada fracionária de Grünwald–Letnikov. Esta formulação discreta deve ser entendida como uma representação útil e não como uma descrição física definitiva, sendo a sua validade limitada ao domínio de energias analisado.

$$\text{Log}(LAC) = a D_{GL}^{\alpha} [\text{Log}(LAC)] + b \quad (2)$$

Onde D_{GL}^{α} é a derivada fracionária de GL aplicada ao vetor f que por sua vez é igual a $\log(LAC)$, a e b são os parâmetros ajustados e α o parâmetro fracionário.

A hipótese central deste trabalho é permitir o estudo da resposta LAC do material polimérico PVDC e verificar se esta se captura por operadores fracionários, para revelar padrões estruturais e regularidades ocultas nos dados experimentais. Investiga-se também a influência da ordem fracionária, α , como parâmetro ajustável na qualidade da modelação avaliando-se o desempenho através de métricas estatísticas (RMSE e R^2),

testes de pressupostos e critérios de informação de Akaike e de Bayes (AIC e BIC).

A seleção do PVDC (poli dicloreto de vinila) como material de estudo justifica-se por três razões principais. Primeiramente o PVDC apresenta elevada homogeneidade estrutural e composição química estável, traduzindo-se em comportamento perante a radiação suave e monotônico ao longo de todo o espectro energético. A ausência de bandas electrónicas de absorção pronunciadas (como as K, L ou M observadas em elementos de maior número atômico) faz do PVDC um caso limite ideal para verificar se os operadores fracionários conseguem identificar corretamente materiais com baixa complexidade e mínima memória não local. Em segundo lugar, como o material polimérico se utiliza em diversas aplicações industriais e tecnológicas, como filmes de barreira, embalagens e componentes expostos a radiação em ambientes laboratoriais a compreensão da resposta à radiação do PVDC tem relevância prática, e, fornece um ponto de referência para outros materiais mais complexos. Em terceiro lugar o LAC do PVDC é altamente regular, sem transições abruptas entre regimes fotoelétrico, Compton e de produção de pares, o que permite avaliar se a ordem fracionária α obtida pelo modelo reflete adequadamente a simplicidade estrutural do material.

A escolha de aplicar o operador fracionário ao Log(LAC) motiva-se por duas razões principais o comportamento do LAC em função da energia apresenta variações multi-regime associadas ao processo de produção de pares, processos fotoelétricos e Compton que se conhecem como exibindo transições suaves e dependências históricas implícitas (Hubbell & Seltzer, 1995) e o cálculo fracionário reconhece-se como o instrumento que permite a modelagem de sistemas com memória, com não localidade e comportamento anômalo, características estas presentes em materiais complexos, polímeros e meios desordenados (Mainardi, 2010; Sun et al., 2018; Tarasov, 2011).

Esta abordagem utiliza-se em modelagem de difusão anômala, transporte em meios heterogêneos e resposta eletromagnética de materiais complexos (Sun et al., 2018), mas a aplicação a LAC permanece inexplorada o que representa uma contribuição original do trabalho.

2. Metodologia

A base de dados Phy-X utiliza-se para obter os valores LAC (coeficiente de atenuação linear) para o polímero PVDC (Poli dicloreto de vinila). No Phy-X, introduziram-se as frações mássicas do polímero (0,2447 C; 0,0208 H; 0,7315 Cl) e definiu-se uma densidade de 1700 kg/m³. A análise realizou-se no intervalo energético de 0,001 MeV a 100000 MeV, obtendo-se finalmente um ficheiro Excel contendo os valores de LAC. (Şakar et al., 2020).

Em Python realiza-se um código de ajuste da função empírica de ordem fracionária utilizada para descrever como LAC varia com a energia do fóton incidente, cuja fórmula adotada é fornecida na equação (1) e (2). A equação expressa que o comportamento logarítmico do material pode ser reconstruído a partir da sua derivada fracionária, e o valor de α indica quanta memória ou complexidade estrutural o material possui.

No modelo proposto, a derivada de Grünwald-Letnikov constitui-se por um parâmetro α que controla o grau de memória. Então valores pequenos tornam o comportamento local, enquanto valores grandes incorporam dependência de longo alcance. Assim, a otimização de α para o valor cujo erro seja o menor, permite a descrição da resposta do material à radiação, o que funciona como um parâmetro físico-matemático relacionado com a complexidade do meio. Os coeficientes a e b, determinam-se por ajuste numérico via `curve_fit` em Python, o que garante que o modelo fracionário se aproxima da

estrutura logarítmica dos dados experimentais. A combinação entre operador fracionário α e o ajuste paramétrico permite capturar quer a componente estrutural (D^α) quer a componente de escala e deslocamento via a e b , o que resulta num modelo híbrido com forte capacidade descritiva.

O algoritmo de ajuste permitiu construir o código de ajuste em Python, e está representado no Quadro I.

Quadro 1. Algoritmo de ajuste de Grünwald-Letnikov para o PVDC

<p>INÍCIO</p> <p>1. Ler dados:</p> <ul style="list-style-type: none">- Vetor de energias x- Vetor de coeficientes LAC- Calcular $\log_dados = \log(LAC)$ <p>2. Definir função GL (f, α):</p> <ul style="list-style-type: none">- Calcular derivada fracionária de Grünwald-Letnikov- Retornar vetor GL_alpha <p>3. Definir modelo linear:</p> $y = a * GL_alpha + b$ <p>4. Otimizar α:</p> <p>para α no intervalo definido:</p> <ul style="list-style-type: none">$GL_alpha = GL(\log_dados, \alpha)$ajustar modelo linear (obter a e b)calcular erro (RMSE)guardar α com menor RMSE <p>5. Com α ótimo:</p> <ul style="list-style-type: none">- Calcular GL_final- Calcular $y_pred = a_opt * GL_final + b_opt$ <p>6. Calcular métricas finais:</p> <ul style="list-style-type: none">- RMSE, MAE, MAPE, R^2, AIC, BIC- Resíduos = $\log_dados - y_pred$ <p>7. Gerar gráficos:</p> <ul style="list-style-type: none">- Ajuste $\log(LAC)$ vs energia- Resíduos vs energia- Regressão linear GL_final vs $\log(LAC)$ <p>FIM</p>

3. Resultados

O ajuste obteve o parâmetro de ordem fracionária igual a 0.001, parâmetro $a = 1,00254$ e $b = -0,00066698$ para um valor de erro RMSE (*Root Mean Square Error*) = 0,00528038.

A qualidade do ajuste do modelo fracionário avalia-se via métricas estatísticas clássicas e testes de pressupostos aplicados aos resíduos. O coeficiente de determinação obtido, $R^2 = 0,999997$, indica que o modelo explica quase toda a variabilidade observada no Log (LAC), o que se reflete em um ajuste perfeito, cujo reforço se complementa com valores de AIC e BIC extremamente baixos (AIC = - 824,514 e BIC = -819,775) que evidenciam com apenas dois parâmetros ajustáveis (a e b) e uma ordem fracionária α muito pequena, a elevada parcimônia do modelo.

Apesar da qualidade global do ajuste, os testes de pressupostos aplicados aos resíduos não obedeceram às hipóteses clássicas. O teste de Shapiro–Wilk apresentou p-valor baixo e igual a 0,0000728694, indicando rejeição da normalidade dos resíduos. De forma complementar, o teste de Durbin–Watson resultou em DW = 0,0900065, valor muito inferior ao intervalo de independência, revelando forte autocorrelação positiva.

O ajuste obtido nestas condições observa-se nas Figura 1-3 realizadas em Python, IDE Spyder. As figuras apresentam a análise completa do modelo fracionário aplicado ao PVDC: a Figura 1 mostra a regressão linear no espaço fracionário para a equação (2), utilizando os parâmetros $\alpha = 0,001$, $a = 1,00254$ e $b = -0,00066698$; a Figura 2 exibe o ajuste ótimo obtido pelo operador de Grünwald–Letnikov aos dados experimentais; a Figura 3 apresenta os resíduos correspondentes, permitindo avaliar a estrutura do erro.

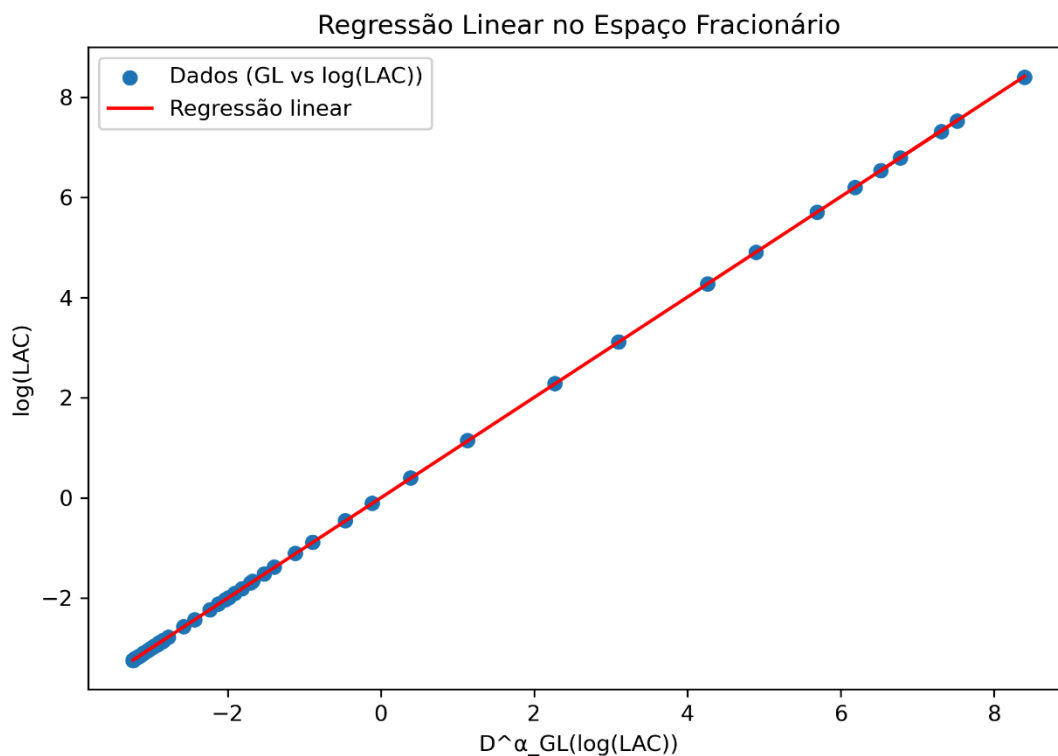


Figura 2. Regressão linear no espaço fracionário para a equação (2) com valores de parâmetros $\alpha = 0,001$, $a = 1,00254$ e $b = -0,00066698$

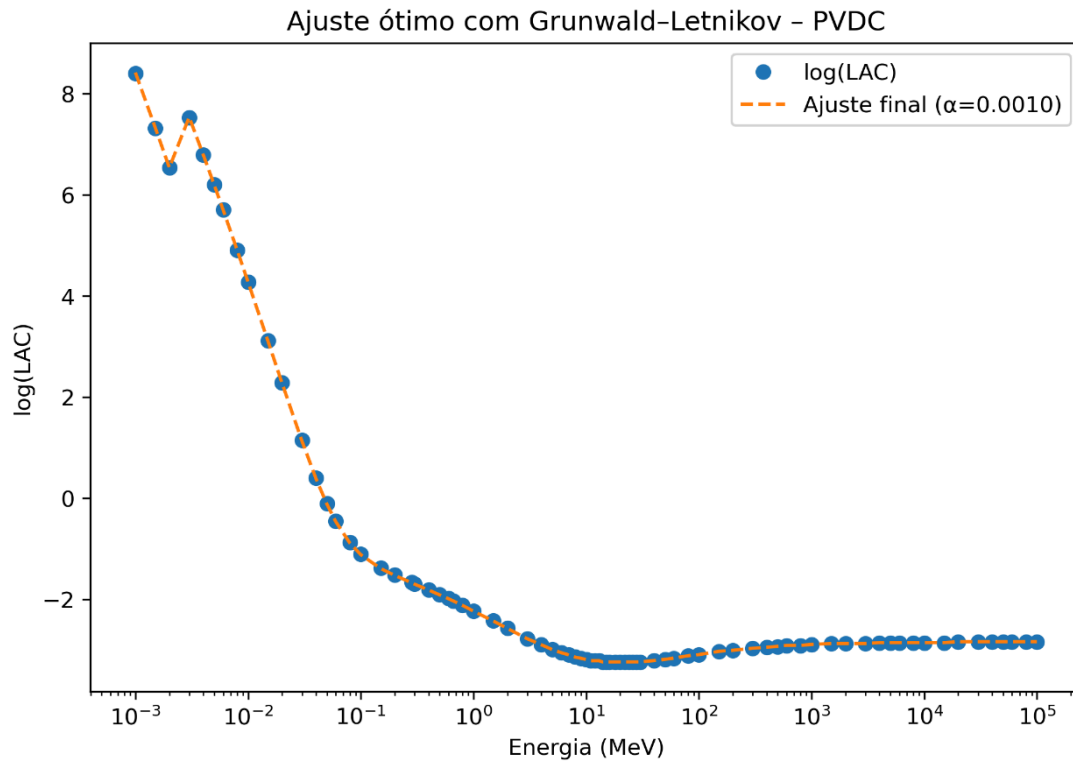


Figura 2. Ajuste ótimo para Grünwald-Letnikov para o PVDC para a equação (2) com valores de parâmetros $\alpha = 0,001$, $a = 1,00254$ e $b = -0,00066698$

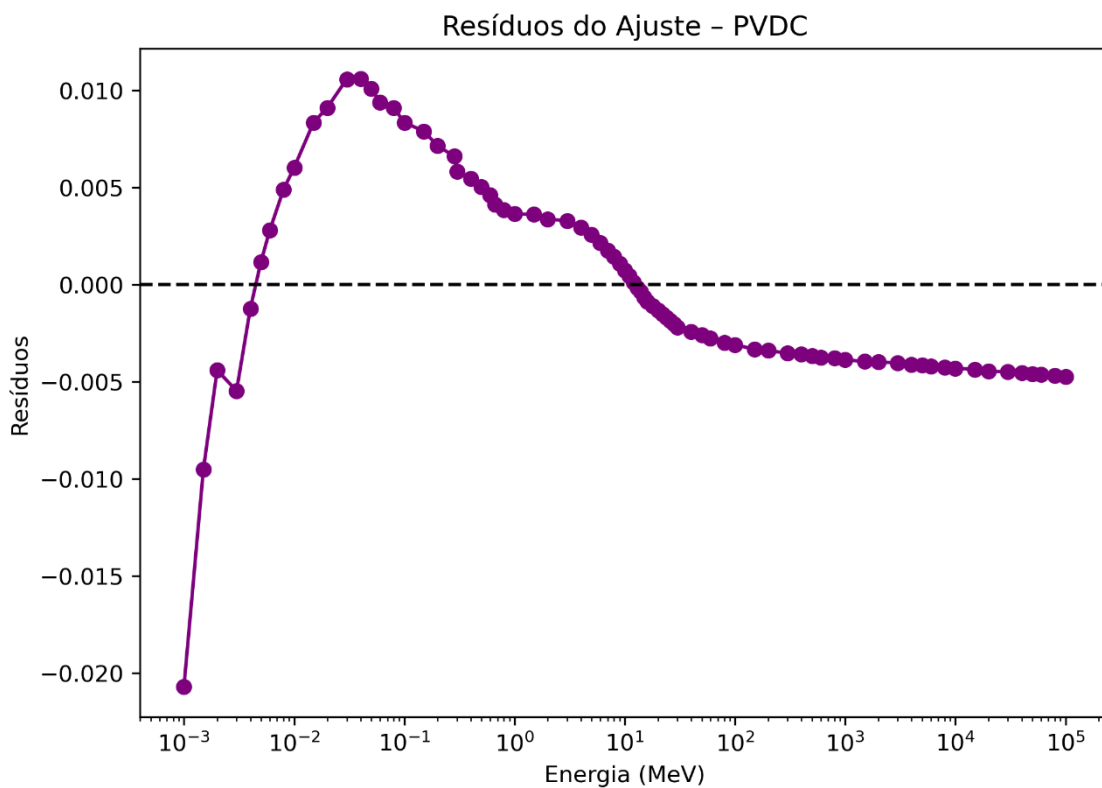


Figura 3. Resíduos do modelo fracionário para a equação (2) com valores de parâmetros $\alpha = 0,001$, $a = 1,00254$ e $b = -0,00066698$

Desta forma o ajuste obtido apresenta uma característica relevante, a curva ajustada e os dados experimentais sobrepõem-se ao longo de várias ordens de grandeza em energia (MeV), o que evidencia comportamento face à radiação demasiado regular. Este comportamento, típico de modelos quase perfeitos aplicados a materiais altamente homogêneos, garante que o ajuste descreva LAC, mas permite a interpretação da ordem fracionária enquanto indicador quantitativo da simplicidade estrutural do PVDC.

4. Discussão dos resultados

Podem reter-se cinco ideias-chave a partir do ajuste quase perfeito obtido neste trabalho. Embora o modelo descreva os dados com elevada precisão, isso não garante que a estrutura fracionária seja a descrição física correta, pois o modelo é empírico e podem existir alternativas com desempenho semelhante (1). O modelo mostrou bom desempenho apenas no intervalo de energia analisado; como não foi validado fora dele, qualquer extrapolação deve ser feita com precaução, sem garantia de comportamento idêntico em outras condições experimentais ou noutros polímeros (2). A interpretação física dos parâmetros exige prudência: pequenas variações nos dados podem alterar significativamente os valores ajustados; por isso, recomenda-se uma análise de sensibilidade para avaliar a robustez face ao ruído experimental e a diferentes estratégias de ajuste (3). Mesmo com resíduos aparentemente aleatórios, podem subsistir efeitos sistemáticos não captados pelo modelo (4). Apesar do bom ajuste, o modelo deve ser usado sobretudo em contexto comparativo. (5) Em síntese, é um modelo útil, mas não definitivo; resultados promissores devem ser confirmados com novos conjuntos de dados, outros materiais e diferentes condições experimentais.

Considera-se ainda face aos resultados obtidos, o modelo ajustado como o modelo identidade, pois α aproxima-se de um valor descrito pela equação (3), o que significa que o modelo fracionário colapsa para o modelo clássico, não se justificando o ajuste fracionário para o PVDC.

$$D^\alpha f \approx f \quad (3)$$

Por conseguinte, e, face aos resultados a ordem fracionária α considera-se como um índice quantitativo de complexidade radiológica do material, respondendo assim ao problema científico, já que GL modela a variação do coeficiente LAC em função da energia. Assim o operador identifica que o PVDC se encontra no limite inferior da escala de complexidade, funcionando como um material de referência para sistemas altamente homogêneos.

Do ponto de vista físico, estes resultados são coerentes com a natureza química do PVDC que retrata um polímero composto por elementos de baixo número atómico, sem bandas de absorção eletrônicas pronunciadas e com ligações químicas relativamente uniformes. A ausência de transições eletrônicas abruptas ou efeitos de borda K, L ou M explica o RMSE extremamente baixos e o facto de o modelo fracionário colapsar para o caso clássico. Em contraste, materiais complexos como metais pesados, compósitos ou sistemas com heterogeneidade estrutural irão tender a apresentar valores de α significativamente maiores.

Estes resultados abrem caminho para investigações futuras envolvendo materiais com maior complexidade estrutural, como metais utilizados em blindagem, compósitos poliméricos, materiais com histerese ou sistemas com transições eletrônicas abruptas. A comparação sistemática dos valores de ordem fracionária α entre diferentes classes de materiais vai permitir consolidar a metodologia proposta para estabelecer uma

taxonomia fracionária da interação radiação–matéria, como se observa:

- $0 \leq \alpha < 0,05$: o comportamento nesta situação é essencialmente local, sem memória fracionária relevante, para materiais homogêneos de resposta suave e previsível, sem transições abruptas. Exemplo: PVDC (caso limite);
- $0,05 \leq \alpha < 0,2$: Existe memória fracionária moderada, com presença de estruturas suaves, mas com uma certa dependência histórica e leve não-localidade. A heterogeneidade é moderada ou existem pequenas irregularidades estruturais;
- $0,2 \leq \alpha < 0,5$: O comportamento não-local é significativo, com resposta multiescala, existência de transições mais marcadas e maior sensibilidade a variações estruturais; típico de compósitos, materiais com bordas de absorção e meios desordenados;
- $\alpha \geq 0,5$: Alta complexidade radiológica, forte não localidade, memória fracionária pronunciada, transições abruptas e comportamento anômalo; esperado em metais pesados, materiais com bordas K, L, M bem definidas e sistemas com histerese.

Nesta escala, o PVDC posiciona-se no extremo inferior, sendo um eventual material de referência para baixa complexidade. Estudos futuros poderão refinar estes intervalos a partir da análise sistemática de diferentes classes de materiais, consolidando a ordem fracionária como métrica robusta de complexidade na interação radiação–matéria.

5. Conclusão

Em síntese, este estudo demonstra que operadores fracionários não somente modelam a variação do coeficiente de atenuação linear, mas fornecem uma métrica interpretável e fisicamente fundamentada para quantificar a complexidade estrutural de materiais irradiados. A abordagem proposta abre caminho para uma nova classe de análises comparativas, com potencial para impactar o estudo de polímeros, compósitos e materiais avançados utilizados em proteção radiológica.

O estudo demonstra ainda que o PVDC apresenta complexidade radiológica mínima, com ordem fracionária igual a 0.001, comportamento local e ausência de memória. O modelo fracionário ajusta os dados com precisão quase perfeita, mas não representa necessariamente a física real e apresenta limitações estatísticas. A metodologia é promissora para comparar materiais e construir uma taxonomia fracionária da interação radiação–matéria.

Referências

- ATTIX, F. H. *Introduction to Radiological Physics and Radiation Dosimetry*. 1. ed. New York: Wiley, 1986. DOI: <https://doi.org/10.1002/9783527617135>.
- DIETHELM, K. *The Analysis of Fractional Differential Equations: An Application-Oriented Exposition Using Differential Operators of Caputo Type*. Berlin: Springer-Verlag, 2010.
- HUBBELL, J. H.; SELTZER, S. M. *Tables of X-ray Mass Attenuation Coefficients and Mass Energy-Absorption Coefficients 1 keV to 20 MeV for Elements Z = 1 to 92 and 48 Additional Substances of Dosimetry Interest*. NIST IR 5632. Gaithersburg: National Institute of Standards and Technology, 1995. DOI: <https://doi.org/10.6028/NIST.IR.5632>.
- KNOLL, G. F. *Radiation Detection and Measurement*. 4. ed. New York: John Wiley, 2010.
- LI, C.; ZENG, F. *Numerical Methods for Fractional Calculus*. 1. ed. Boca Raton: CRC Press, 2015.
- MAINARDI, F. *Fractional Calculus and Waves in Linear Viscoelasticity: An Introduction to Mathematical Models*. London: Imperial College Press, 2010. DOI: <https://doi.org/10.1142/p614>.

OLDHAM, K. B.; SPANIER, J. (Org.). *The Fractional Calculus: Theory and Applications of Differentiation and Integration to Arbitrary Order*. New York: Academic Press, 2010.

PODLUBNY, I. *Fractional Differential Equations: An Introduction to Fractional Derivatives, Fractional Differential Equations, to Methods of Their Solution and Some of Their Applications*. San Diego: Academic Press, 1999.

SUN, H.; ZHANG, Y.; BALEANU, D.; CHEN, W.; CHEN, Y. A new collection of real-world applications of fractional calculus in science and engineering. *Communications in Nonlinear Science and Numerical Simulation*, v. 64, p. 213–231, 2018. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.cnsns.2018.04.019>.

ŞAKAR, E.; ÖZPOLAT, Ö. F.; ALIM, B.; SAYYED, M. I.; KURUDIREK, M. *Phy-X / PSD: Development of a user-friendly online software for calculation of parameters relevant to radiation shielding and dosimetry*. *Radiation Physics and Chemistry*, v. 166, p. 108496, 2020. Disponível em: <https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2019.108496>.

TARASOV, V. E. *Fractional Dynamics: Applications of Fractional Calculus to Dynamics of Particles, Fields, and Media*. Berlin: Springer-Verlag, 2011.

ZITANE, H.; TORRES, D. F. M. A class of fractional differential equations via power non-local and non-singular kernels: Existence, uniqueness, and numerical approximations. *Physica D: Nonlinear Phenomena*, v. 457, p. 133951, 2024. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.physd.2023.133951>.