

Роль химического беспорядка в магнетизме соединения YbInCu_4

И. В. Свечкарев, С. Н. Доля

*Физико-технический институт низких температур им. Б. И. Веркина НАН Украины,
Украина, 310164, г. Харьков, пр. Ленина, 47
E-mail: isvechkarev@ilt.kharkov.ua*

Статья поступила в редакцию 10 марта 1999 г.

Установлено, что химический беспорядок в соединении YbInCu_4 , особенно в подрешетке Yb, существенно влияет на его магнитные свойства вследствие пространственной неоднородности температуры валентного фазового перехода первого рода T_V . Описана эволюция магнитной восприимчивости с учетом дисперсии T_V при разупорядочении стехиометрического состава соединения YbInCu_4 , под действием давления и при вариациях состава в твердых растворах $\text{YbIn}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Cu}_4$. При этом определено поведение основных параметров системы, маскирующееся сглаживанием особенности магнитной восприимчивости неупорядоченного образца при фазовом переходе. В частности, определена величина производной $dT_V/dx = 203$ К. Рассматривается причина резкого изменения концентрационной зависимости величины дисперсии и парамагнитной температуры Кюри при $x_c \approx 0,25$.

Установлено, що хімічний не порядок в сполуці YbInCu_4 , особливо в підґратці Yb, суттєво впливає на її магнітні властивості внаслідок просторової неоднорідності температури валентного фазового переходу першого роду T_V . Описано еволюцію магнітної сприйнятливості з урахуванням дисперсії T_V при розупорядкуванні стехіометричного складу сполуки YbInCu_4 , під дією тиску і при варіаціях складу в твердих розчинах $\text{YbIn}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Cu}_4$. При цьому встановлено поведінку основних параметрів системи, яка маскується сглаживанням особливості магнітної сприйнятливості неупорядкованого зразка при фазовому переході. Зокрема, встановлено величину похідної $dT_V/dx = 203$ К. Розглянуто причину різкої зміни концентраційної залежності величини дисперсії і парамагнітної температури Кюри при $x_c \approx 0,25$.

PACS: 75.30.-m

1. Введение

Нестабильная валентность некоторых редкоземельных элементов (Ce, Sm, Eu, Yb) служит причиной множества необычных свойств металлических или полупроводниковых систем, содержащих эти элементы. К таким свойствам можно отнести и фазовые переходы первого рода, сопровождающиеся скачкообразной сменой валентного состояния ионов (обычно от почти целочисленной, HF-фаза тяжелых фермионов, до промежуточной валентности, IV-фаза). Переходы изоморфны даже при значительных скачках объема (до 15% в чистом Ce [1]), и линия их фазовой границы на P, T -диаграмме заканчивается трикритической точкой, подобно диаграмме жидкость—пар, с дальнейшим непрерывным переходом между фазами [2], или, скорее, режимами взаимодействия f -уровня с электронами проводимости. Заметим, что в недавней работе [3] обра-

щается внимание на то, что линия фазовых переходов первого рода продолжается за трикритической точкой линией переходов второго рода, т.е. в кристаллическом строении фаз возможны различия, лежащие, по-видимому, за пределами разрешения прямых структурных исследований.

Хотя принципиальная связь скачка объема с изменением валентного состояния и, соответственно, размера электронной оболочки редкоземельного иона очевидна, пусковой механизм фазового перехода I рода, равно как и механизм ограничения величины скачка валентности при переходе, до настоящего времени служат предметом дискуссии и порождают новые теоретические модели. Если не учитывать ряд модификаций, эти модели сводятся к следующим основным видам: возбуждение электронов с локализованного f -уровня в зонные состояния [4,5], моттовский переход с дelokализацией самого f -уровня [6,7], межконфи-

гурационные флуктуации [8–10], коллапс объема вследствие сильной зависимости от объема энергии Кондо (KVC модель) [11–13] и переход сугубо зонной природы [14].

Следует отметить, что не все перечисленные модели прошли количественное тестирование на реальных системах. В тех же случаях, когда такое тестирование проводилось, его результаты нельзя признать однозначным свидетельством в пользу определенной модели, поскольку при этом либо рассматривались не все аспекты поведения фазовой диаграммы (в частности, возможное влияние на нее магнитного поля [13]), либо выбранные параметры модели не отвечали установленным фактам (как, например, принятое в [10,15] модельное значение скачка валентности $\Delta v \approx 1$ вместо экспериментально найденного 0,1 для соединения YbInCu_4). Кроме того, наиболее обстоятельные апробации моделей в работах [13,15] проведены на разных объектах, для которых возможны различные механизмы перехода. Таким образом, для выяснения движущих сил валентных фазовых переходов I рода необходимо наряду с поиском новых систем с валентными переходами более детальное изучение особенностей самих фазовых диаграмм и количественное сопоставление различных теоретических моделей на едином объекте.

Среди таких объектов особо привлекательным выглядит интерметаллическое соединение YbInCu_4 . Это пока единственное известное соединение, у которого валентный фазовый переход первого рода осуществляется при стехиометрическом составе, атмосферном давлении и удобной для экспериментов температуре ($T_V \approx 40$ К [10,16,17]). Вследствие этого часть фазовой диаграммы может быть получена (по крайней мере принципиально) на объекте с высокой степенью совершенства. Для этого соединения, а также его структурных и электронных аналогов уже накоплен значительный экспериментальный материал с элементами анализа механизмов перехода (см. [6,18,19] и ссылки в них), но недостаточный для окончательных выводов. К сожалению, в отличие от Se-содержащих систем, T_V соединения YbInCu_4 понижается под давлением. Поэтому реализовать наиболее важную для однозначного тестирования моделей область фазовой диаграммы с трикритической точкой все-таки невозможно без использования твердых растворов замещения, в частности, квазибинарной системы $\text{YbIn}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Cu}_4$ [18]. Последствия же химического беспорядка для свойств и строения фазовой диаграммы этой системы не известны.

Цель настоящей работы — показать важность учета неупорядоченности в соединениях типа YbInCu_4 для корректного определения границ на фазовой диаграмме. Заметим, что при существовавшем способе приготовления образцов вследствие влияния беспорядка наиболее выраженная особенность в точке фазового перехода обнаружена для образца нестехиометрического состава $\text{Yb}_{1,2}\text{In}_{0,8}\text{Cu}_4$, которому впоследствии и отдавалось предпочтение в исследованиях [10,15]. Лишь сравнительно недавно с помощью специальной технологии авторам работ [16–18] удалось получить монокристаллы стехиометрического состава с высокой степенью порядка и исключительно резкими скачками свойств в точке перехода и прояснить микроскопическую картину неупорядоченности образцов при различной технологии их приготовления [20].

Следует отметить, что для детектирования и идентификации типа перехода не всегда применяются сугубо структурные методы. Во многих случаях более удобными оказываются исследования различных структурно-чувствительных электронных свойств. Однако эффективность таких исследований зависит от однозначного соответствия особенностей поведения электронных свойств валентному и структурному состояниям системы. В соединениях редкоземельных элементов вследствие большой величины магнитных моментов во многих случаях надежно интерпретируемым свойством служит магнитная восприимчивость χ . Простая модель учета беспорядка и оценка его роли в магнитообъемном эффекте $d \ln \chi / d \ln V$ были рассмотрены в [19,21]. В настоящей работе эта модель (разд. 2) тестируется на известных в литературе данных о зависимости магнитной восприимчивости χ от степени порядка в стехиометрическом соединении YbInCu_4 [20] (разд. 3), от давления для нестехиометрического состава $\text{Yb}_{1,2}\text{In}_{0,8}\text{Cu}_4$ [15] (разд. 4) и используется для анализа системы непрерывных твердых растворов $\text{YbIn}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Cu}_4$ [17] (разд. 5). Основные результаты суммируются в разд. 6.

2. Модельное описание магнитной восприимчивости YbInCu_4

Магнитная восприимчивость совершенного образца соединения YbInCu_4 хорошо описывается следующим выражением [19]:

$$\chi(T) = \chi_0 + [C/(T - \Theta) - \chi_0] W(T). \quad (1)$$

Здесь $\chi_0 \propto 1/T_K^{\text{IV}}$ [22] — не зависящая от температуры восприимчивость, а T_K^{IV} — характеристическая температура.

ческая температура Кондо в IV состоянии; C и Θ — константа и температура Кюри; $W(T)$ — ступенчатая функция:

$$W(T < T_V) = 0; W(T > T_V) = 1. \quad (2)$$

Такая структура выражения для восприимчивости отвечает условию $\Delta_{CEF} \leq T_V < T_K^{IV}$ (Δ_{CEF} — полное расщепление основного мультиплета Yb $J = 7/2$ кристаллическим электрическим полем), которое выполняется для соединения $YbInCu_4$ ($\Delta_{CEF} = 44$ К [23], $T_K^{IV} \approx 420$ К [17]). Значения параметров в (1) были подобраны ранее в работе [16] и приведены в табл. 1. Вытекающая из константы Кюри величина магнитного момента на ион Yb μ близка к ожидаемой величине для Yb^{3+} в согласии с малым отклонением истинной валентности иона от целочисленной в тяжелофермионной HF-фазе $YbInCu_4$ [17,24]. На рис. 1 (кривая 1) видно, что при выбранных параметрах расчет по формуле (1) хорошо соответствует эксперименту [16].

Таблица 1

Значения модельных параметров для магнитной восприимчивости и функции распределения T_V в соединениях $YbInCu_4$. Номера образцов соответствуют рис. 1.

Параметр	Образец		
	1	2	3
C , эме·К/моль	2,55	2,55	2,55
Θ , К	7,2	23	33
χ_0 , 10^{-3} эме/моль	6,0	6,0	8,4
n	0	0,35	0,76
\bar{T}_{V1} , К	40	41	38
\bar{T}_{V2} , К	0	47	74
σ_1 , К	<1,0	1,9	2,85
σ_2 , К	0	4,9	11

Вслед за работой [20] и в соответствии со структурными данными будем полагать, что основным источником беспорядка в стехиометрическом соединении $YbInCu_4$ является неупорядоченное распределение атомов вида $(Yb_{1-x}In_x)(In_{1-x}Yb_x)Cu_4$ в подрешетках Yb и In , которое вызывает пространственную неоднородность температуры фазового перехода T_V . Учитывая большую величину скачка восприимчивости в точке перехода, а также высокую чувствительность T_V к различным воздействиям (давления, примесей, магнитного поля [15,20,24]), можно ограничиться именно этим механизмом влияния узельного или химического беспорядка на магнитную восприимчивость (1). В таком случае справедливость выражения (1) сохранится, если $W(T)$ в (1) будет представлять

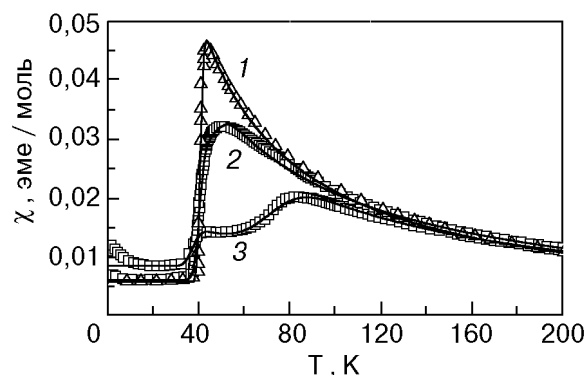


Рис. 1. Температурная зависимость магнитной восприимчивости в соединении $YbInCu_4$: 1 — монокристалл с высокой степенью совершенства, 2 — поликристалл, 3 — образец с большой степенью беспорядка. Точки — экспериментальные данные [20], сплошные линии — результат модельной подгонки.

функцию распределения значений T_V^i i -х элементов объема образца. Как оказалось [19], для слабоупорядоченных образцов соединения $YbInCu_4$ вполне удовлетворительной функцией распределения может служить нормальное распределение Гаусса:

$$W(T) = W(T, \bar{T}_V, \sigma) = \{1 + \text{erf} [(T - \bar{T}_V)/(\sqrt{2}\sigma)]\} / 2 \quad (3)$$

($\text{erf}(x)$ — стандартная функция ошибок). Для описания восприимчивости в окрестности фазового перехода с помощью выражений (1), (3) достаточно подобрать параметры функции распределения — некоторое среднее значение \bar{T}_V и величину дисперсии σ^2 — при асимптотических значениях χ_0 , μ и Θ . Далее на примерах анализа поведения магнитной восприимчивости в зависимости от степени порядка, приложенного давления или вариаций состава будут показаны применимость и следствия использования предложенной модели.

3. Анализ роли беспорядка в стехиометрических образцах $YbInCu_4$

Как видно на рис. 1, по мере роста беспорядка в образце острый максимум на температурной зависимости магнитной восприимчивости соединения $YbInCu_4$ сглаживается, а затем трансформируется в двугорбую кривую, характерную также для образцов нестехиометрического состава (рис. 2). Возможны несколько причин появления двугорбости. Во-первых, наличие по крайней мере двух типов доминирующих дефектов структуры, вполне естественное для предполагаемого расположения атомов Yb в двух подрешетках —

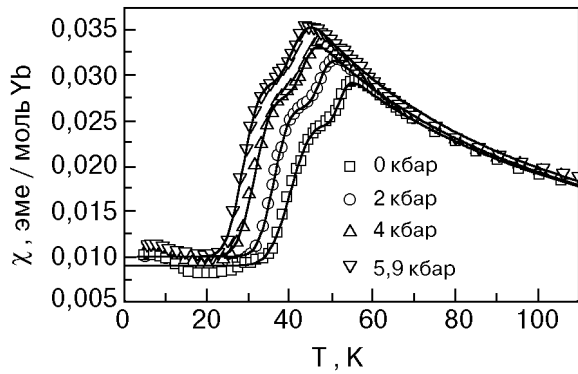


Рис. 2. Температурная зависимость магнитной восприимчивости в нестехиометрическом соединении $\text{Yb}_{1,2}\text{In}_{0,8}\text{Cu}_4$ при различных давлениях по экспериментальным данным [15], сплошные линии – результат модельной подгонки.

собственной и подрешетке In. Во-вторых, некоторое расслоение образца по составу в пределах одной структурной фазы при специальном виде фазовой диаграммы [20]. Наконец, распад образца на две фазы. В любом из перечисленных вариантов функция распределения $W(T)$ в (1) должна включать два гауссиана типа (3) с разными наборами параметров:

$$W(T) = W_1(T, \bar{T}_{V1}, \sigma_1)(1 - n) + W_2(T, \bar{T}_{V2}, \sigma_2)n \quad (4)$$

На рис. 1, 2 показаны результаты подбора параметров \bar{T}_{Vj} , σ_j и n в (1), (4) для наилучшего описания зависимостей $\chi(T)$ для образцов с различной степенью неупорядоченности. Значения параметров функции распределения (4) и магнитные характеристики χ_0 , μ и Θ приведены в табл. 1, 2.

Разумеется, при описании двугорбых зависимостей $\chi(T)$ для нестехиометрических образцов также следует использовать функцию распределения (4).

4. Влияние давления на восприимчивость $\text{Yb}_{1,2}\text{In}_{0,8}\text{Cu}_4$

На рис. 2 представлена температурная зависимость магнитной восприимчивости нестехиометрического соединения $\text{Yb}_{1,2}\text{In}_{0,8}\text{Cu}_4$ при различных давлениях, взятая из работы [15], и ее модельное описание. Соответствующие параметры модели приведены в табл. 2, а зависимости температур \bar{T}_{V1} и \bar{T}_{V2} от давления показаны на рис. 3. В интервале использованных давлений эти зависимости линейны и имеют практически одинаковый наклон со средним значением $d\bar{T}_V/dP = -2 \text{ K/кбар}$. Эта величина мало отличается от полученной авторами работы [15] из анализа сме-

щений под давлением особенностей на кривой $\chi(T)$, хотя форма последней несколько деформируется под действием давления, как это видно по изменению параметров функции распределения (4) в табл. 2. Причиной слабого, но устойчивого изменения функции распределения $W(T)$ под действием давления может быть накопление дефектов структуры. К сожалению, сведения об обратимости восприимчивости после снятия давления в работе [15] не приведены. Последующие измерения влияния давления на восприимчивость соединения стехиометрического состава как для несовершенного образца, но с учетом беспорядка [19, 21], так и для образца высокого качества [18] дают практически ту же величину производной: -2 K/кбар .

Таблица 2.

Значения модельных параметров функции распределения для нестехиометрического соединения $\text{Yb}_{1,2}\text{In}_{0,8}\text{Cu}_4$ при различных давлениях (рис. 2).

Параметр	Давление, кбар			
	0	2	4	5,9
n	0,32	0,28	0,38	0,42
\bar{T}_{V1} , K	40,8	36,7	32	29,2
\bar{T}_{V2} , K	52	47	43,7	40,7
σ_1 , K	4	3,7	3,74	3,3
σ_2 , K	1,9	1,6	3	3,26

5. Роль неупорядоченности в твердых растворах $\text{YbIn}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Cu}_4$

Анализ магнитных свойств сплавов $\text{YbIn}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Cu}_4$ представляет особый интерес, поскольку считается, что в этой системе валентный фазовый переход первого рода трансформируется в непрерывный при $x \approx 0,25$ в силу изменений параметров взаимодействия электронов при

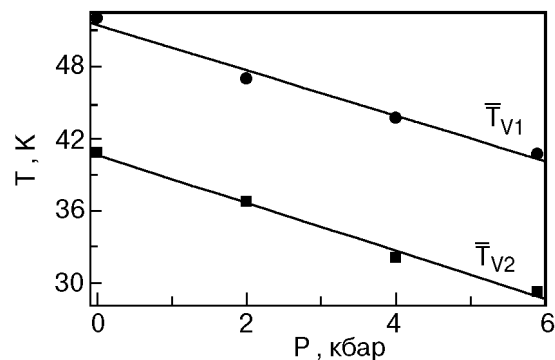


Рис. 3. Зависимость от давления модельной величины температур фазовых переходов для соединения $\text{Yb}_{1,2}\text{In}_{0,8}\text{Cu}_4$.

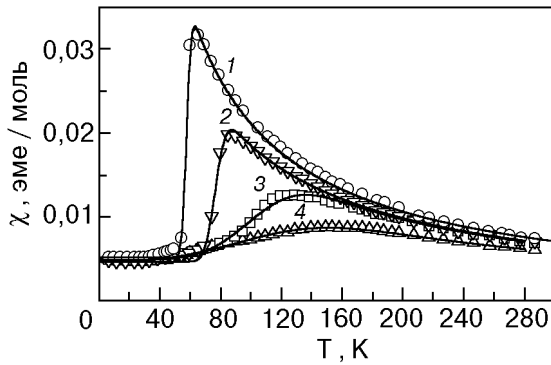


Рис. 4. Температурные зависимости магнитной восприимчивости сплавов $\text{YbIn}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Cu}_4$ по экспериментальным данным [17] и их модельная аппроксимация (сплошные линии) при различных концентрациях x : 0,1 (1); 0,2 (2); 0,3 (3); 0,4 (4).

сплавлении [17]. Монокристаллические образцы твердых растворов в [17] были выращены по той же технологии под флюсом InCu , что и соединение YbInCu_4 , что обеспечивало высокую степень совершенства образцов за исключением хаотичности распределения атомов по узлам подрешетки In-Ag . По этой причине при аппроксимации зависимостей $\chi(T)$ сплавов можно ограничиться использованием формул (1), (3). Результаты аппроксимации представлены на рис. 4, полученные значения подгоночных параметров — на рис. 5.

Использованная модель достаточно хорошо описывает эволюцию температурных зависимостей восприимчивости в сплавах при разумном поведении параметров (по крайней мере до значений $x \sim 0,3$). Так, линейный рост температуры фазового перехода $d\bar{T}_V/dx = 203 \text{ K}$ (рис. 5,а) с увеличением концентрации серебра удовлетворительно согласуется с данными, вытекающими из измерений упругих свойств ($dT_V/dx = 210 \text{ K}$ [25]). Довольно слабый начальный рост величины $\sigma = (1 + 25x)$ (рис. 5,б) представляется естественным, поскольку беспорядок имеет место в In-Ag подрешетке рассматриваемого сплава и только косвенно затрагивает f -состояния Yb .

Парамагнитная температура Кюри Θ также мало изменяется в указанном интервале концентраций (рис. 5,в). Однако этот важный параметр, характеризующий взаимодействие f -уровня с зонными электронами, сильно зависит от точности восстановления зависимостей $\chi(T)$ из опубликованных данных и от выбора интервала температур для их аппроксимации. Поэтому приведенные на рис. 5,в и в табл. 2 значения Θ носят, скорее, качественный характер, и заслуживает внимания только аномальный рост абсолютной величины Θ , как и σ , начиная с некоторого критического значения $x_c = 0,25-0,3$.

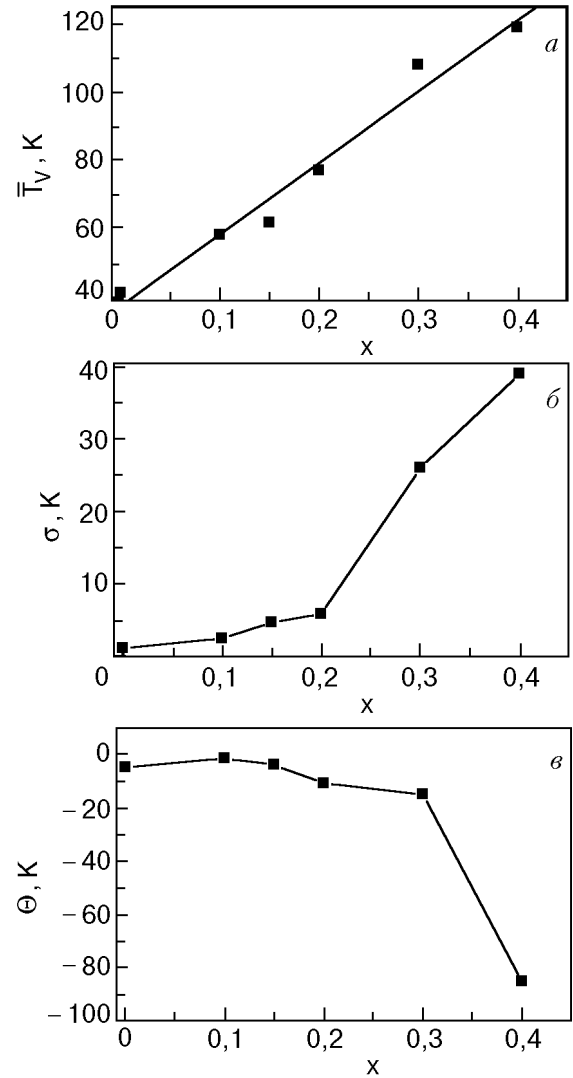


Рис. 5. Концентрационная зависимость параметров модели, рассчитанных по (1), (3), для сплавов $\text{YbIn}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Cu}_4$: \bar{T}_V (а); σ (б); Θ (в).

6. Обсуждение результатов модельного анализа восприимчивости

1. Отметим прежде всего, что в используемой модели принята простейшая структура функции распределения температуры фазового перехода T_V в пространственно-неоднородном образце. Пригодность именно такой функции заранее не очевидна, тем не менее предложенная модель позволяет достаточно хорошо аппроксимировать трансформацию магнитной восприимчивости соединения YbInCu_4 под влиянием различных воздействий в сочетании с имеющимся или вызванным этими воздействиями беспорядком. Это дает основание считать, что найденное при такой аппроксимации поведение физических параметров адекватно свойствам совершенной системы. Примечательно, что для ряда составов негомогенных инварных сплавов Fe-Ni экспериментально вос-

становленная функция пространственного распределения температуры Кюри оказывается близкой к гауссовской [26]. По-видимому, распределение (3) действительно может служить хорошим начальным приближением для учета неидеальности разнообразных систем.

2. Результаты успешной модельной подгонки температурных зависимостей восприимчивости соответствуют предположению о том, что главная ответственность за сглаживание особенностей физических свойств неупорядоченных образцов при фазовом переходе лежит на дисперсии величины T_V . Такое предположение подтверждается аномальным ростом магнитообъемного эффекта в несовершенных образцах в окрестностях температуры перехода [27], поскольку именно в этом случае в эффект вовлекается сильная зависимость от давления T_V^i и $\chi(T_V^i)$ элементов объема образца с $T_V^i \simeq T$. Прямым микроскопическим свидетельством дисперсии T_V является одновременное наблюдение сигнала ЯМР от IV и HF-фаз [28], сосуществующих в температурном интервале $\sim \Theta$ вокруг T_V .

Величина температуры Кюри Θ также зависит от состава и степени совершенства образцов, однако роль ее возможной дисперсии в (1), по проведенным оценкам, значительно уступает влиянию T_V . Поэтому для упрощения анализа неоднородность Θ в данной работе не учитывается, что не влияет на последующие выводы полуквантового характера.

3. Рост степени беспорядка в стехиометрическом соединении, как и отклонение от стехиометрии, приводит к «расщеплению» T_V на две температуры. Их одинаковая зависимость от давления выглядит аргументом в пользу концентрационного расслоения образца в пределах одной структурной фазы, а не распада на различные фазы. Такое расслоение может быть вызвано перитектическим характером фазовой диаграммы для соединения YbInCu_4 , как предполагалось авторами работы [20]. Однако вид фазовой диаграммы в области рассматриваемого стехиометрического состава прямыми структурными методами пока не установлен, и принципиально не исключено существование двух изомерных и близких по атомному объему и свойствам HF-фаз, переход которых в IV фазу хотя и происходит при несколько отличающихся температурах, но контролируется одними и теми же параметрами системы. В таком случае сам факт и истинная природа расслоения образца не имеют особого значения, и для адекватного описания ряда его свойств при умеренном беспорядке остается пригодной функ-

ция распределения вида (3), но с высокой величиной дисперсии [19].

4. При наличии расслоения в самой высокотемпературной фазе рассматриваемого соединения детальное сопоставление параметров функции распределения \bar{T}_V для образцов, полученных при отличающихся режимах в различных лабораториях, и тем более разными методами, имеет смысл только на качественном уровне. Из сравнения значений дисперсии в табл. 2 и на рис. 5,б следует, что беспорядок, обусловленный несовершенством технологии изготовления стехиометрических образцов, является для магнетизма рассматриваемого соединения значительно более важным фактором, чем, например, принципиально неустранимый беспорядок в подрешетке In–Ag твердого раствора $\text{YbIn}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Cu}_4$ (для сравнения укажем, что образцу 3 на рис. 1 отвечает величина $x \approx 0,06$ в упоминавшейся выше эквивалентной формуле для неупорядоченного стехиометрического соединения $(\text{Yb}_{1-x}\text{In}_x)(\text{In}_{1-x}\text{Yb}_x)\text{Cu}_4$ [20]).

Таким образом, результаты анализа свойств сплавов на основе соединения YbInCu_4 без соответствующего контроля состояния подсистемы Yb–In следует рассматривать с осторожностью. Это замечание не относится к используемым здесь данным для сплавов $\text{YbIn}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Cu}_4$, так как они получены по единой технологии, которая сводит к минимуму беспорядок в подрешетке Yb–In [17].

5. Поведение магнитной восприимчивости в сплавах $\text{YbIn}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Cu}_4$ с повышением концентрации серебра до значений $x \approx 0,3$ описывается в модели (1),(3) по существу лишь ростом величины \bar{T}_V и ее дисперсии. Этот подход принципиально отличается от использованного в [17], где экспериментальные зависимости $\chi(T)$ аппроксимировались теоретической кривой для примеси Кондо с $J = 7/2$ [22] путем подбора характеристической температуры отдельно для низко- и высокотемпературной фаз. Таким образом, эволюция асимптотических участков кривых $\chi(T)$ при сплавлении, согласно [17], связана с изменением параметров T_K^{LV} и T_K^{HF} . При этом из рассмотрения выпадает переходная область температур, а с ней и поведение $T_V(x)$, которые играют основную роль в предлагаемой модели беспорядка.

Утрированное противопоставление механизмов температурной зависимости χ в обсуждаемых подходах демонстрирует потенциальную важность учета беспорядка. Реально оба механизма должны быть приняты во внимание при описании эксперимента. Модель (1),(3), в отличие от [17], легко позволяет сделать это, но, как видно, одной температурной зависимости восприимчивости оп-

ределенно мало для однозначного подбора удвоенного числа параметров. Судя по результатам работ [19,21], магнитообъемный эффект $d \ln \chi / d \ln V$ в рассматриваемых сплавах может успешно восполнить недостающую экспериментальную информацию.

6. Этот эффект был бы особенно полезным вблизи концентрации x_c , которая оказывается действительно критической для параметров предлагаемой модели: при $x > x_c$ значительно усиливается концентрационная зависимость как σ , так и Θ . Дисперсия \bar{T}_V и характеристика взаимодействия магнитного момента с зонными электронами в HF-фазе ($|\Theta| \approx T_K^{HF}$) [29] непосредственно не связаны друг с другом, и на основании имеющихся данных пока нельзя однозначно установить причину такого поведения.

Возможной причиной может быть смена при x_c скачкообразного фазового перехода на непрерывный [17], предполагающая сближение значений T_K^{IV} и T_K^{HF} . Соответствующий рост $|\Theta|$ на рис. 5,6 не противоречит такой гипотезе и асимптотическому значению $T_K = 143$ К при $x = 1$ [17], а возрастающая при этом роль дисперсии температуры Кондо может отразиться в усилении роста σ . Хотя в случае смены типа фазового перехода сама модель при $x > x_c$ должна быть модифицирована, вытекающие из нее зависимости на рис. 4 выглядят естественнее сильных и немонотонных изменений T_K^{IV} и T_K^{HF} в [17]. Причем последние не имеют никаких особенностей при x_c , и эта концентрация выделена в [17] на основании изменений характера поведения $\chi(T)$ только в переходной области температур. Разумеется, линия фазовых переходов первого рода на рис. 5,а при таком сценарии должна заканчиваться при $x \approx 0,3$, а ее продолжение при $x > x_c$ является всего лишь следствием удачной имитации зависимости $\chi(T)$ исходной моделью (1), (3).

Не исключено, однако, что обнаруженное поведение параметров модели вызвано включением дополнительного взаимодействия моментов при достижении определенного уровня заполнения зон или координации примесных атомов в ближайшем окружении Yb (типа эффекта протекания). Возможно также, что такое поведение связано с началом некоторой структурной хаотизации в сплаве с участием подрешетки Yb, несмотря на использование единой технологии изготовления сплавов. Перечень возможных сценариев намного шире, и для отбора наиболее реалистичного из них необходимы дальнейшие исследования структурных и электронных свойств системы $\text{YbIn}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Cu}_4$ в области концентраций $x \sim x_c$.

Как показывает представленный анализ, пока нет достаточных оснований принимать концентрацию x_c за точку окончания линии фазового перехода I рода на T, x -диаграмме.

7. Заключение

Подводя итог проведенному рассмотрению роли химического беспорядка в соединении YbInCu_4 и сплавах $\text{YbIn}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Cu}_4$, можно сформулировать следующие утверждения.

1. Химический беспорядок, особенно в подрешетке Yb, может кардинально изменить свойства рассматриваемых систем за счет пространственной неоднородности температуры валентного фазового перехода первого рода.

2. Предложенная ранее авторами [19] модель с нормальным распределением Гаусса для T_V описывает трансформацию магнитной восприимчивости YbInCu_4 под влиянием различных воздействий при правдоподобном поведении параметров. Впервые найденная зависимость $T_V(x)$ в сплавах $\text{YbIn}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Cu}_4$ близка к линейной с производной $dT_V/dx = 203$ К.

3. Поведение параметров системы $\text{YbIn}_{1-x}\text{Ag}_x\text{Cu}_4$ значительно изменяется при критической концентрации $x_c \approx 0,3$, но относить это к смене типа фазового перехода преждевременно. Для исключения других сценариев необходимы дополнительные исследования структурных и электронных свойств сплавов в области критического состава системы.

1. D. C. Koskenmaki and K. A. Gschneidner, Jr., in: *Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earths*, Vol. 1, K. A. Gschneidner, Jr. and L. Eyring (eds.) North-Holland, Amsterdam (1978) Chap. 4, p. 337; J. M. Lawrence, P. S. Riseborough, and R. D. Parks, *Rep. Prog. Phys.* **44**, 1 (1981).
2. Ye. G. Ponyatovskii, *Dokl. Akad. Nauk SSSR* **120**, 10221 (1958).
3. G. Eliashberg and H. Capellmann, *Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **67**, 111 (1998).
4. L. M. Falicov and J. C. Kimball, *Phys. Rev. Lett.* **22**, 997 (1969); R. Ramirez and L. M. Falicov, *Phys. Rev.* **B3**, 2424 (1971).
5. J. K. Freericks and V. Zlatić, *Phys. Rev.* **B58**, 322 (1998).
6. B. Johansson, *Philos. Mag.* **30**, 469 (1974).
7. B. Johansson and M. S. S. Brooks, in: *Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earths*, Vol. 17, K. A. Gschneidner, Jr., L. Eyring, G. H. Lander, and G. R. Choppin (eds.), Elsevier Science Publisher B. V., Amsterdam (1993) Chap. 112, p. 149.
8. M. Croft, J. A. Hodges, E. Kemly, A. Krishnan, V. Murgai, and L. C. Gupta, *Phys. Rev. Lett.* **48**, 826 (1982).
9. I. Novik, *Hyperfine Interact.* **13**, 89 (1983).
10. I. Felner and I. Nowik, *Phys. Rev.* **B33**, 617 (1986).
11. M. Lavagna, C. Lacroix, and M. Cyrot, *J. Phys.* **F13**, 1007 (1983).

12. J. W. Allen and R. M. Martin, *Phys. Rev. Lett.* **49**, 1106 (1982).
13. J. W. Allen and L. Z. Liu, *Phys. Rev.* **B46**, 5047 (1992).
14. T. Jarlborg, E. G. Moroni, and G. Grimvall, *Phys. Rev.* **B55**, 1288 (1997).
15. I. Nowik, I. Felner, J. Voiron, J. Beille, A. Najib, E. du Tremolet de Lacheisserie, and E. Gratz, *Phys. Rev.* **B37**, 5633 (1988).
16. J. L. Sarrao, C. L. Benton, Z. Fisk, J. M. Lawrence, D. Mandrus, and D. Thompson, *Physica* **B223–224**, 366 (1996).
17. J. L. Sarrao, C. D. Immer, C. L. Benton, Z. Fisk, J. M. Lawrence, D. Mandrus, and D. Thompson, *Phys. Rev.* **B54**, 12207 (1996).
18. J. L. Sarrao, A. P. Ramirez, T. W. Darling, F. Freibert, A. Migliori, C. D. Immer, Z. Fisk, and Y. Uwatoko, *Phys. Rev.* **B58**, 409 (1998).
19. I. V. Svechkarev, A. S. Panfilov, S. N. Dolja, H. Nakamura and M. Shiga, in: *Itinerant Electron Magnetism: Fluctuation Effects*, D. Wagner, W. Brauneck, and A. Solontsov (eds.), Kluwer Academic Publishers, the Netherlands (1998), p. 309; I. V. Svechkarev, A. S. Panfilov, S. N. Dolja, H. Nakamura, and M. Shiga, *J. Phys.: Condens. Matter* (1999) (submitted).
20. J. M. Lawrence, G. H. Kwei, J. L. Sarrao, Z. Fisk, D. Mandrus, and J. D. Thompson, *Phys. Rev.* **B54**, 6011 (1996).
21. I. V. Svechkarev, A. S. Panfilov, S. N. Dolja, H. Nakamura and M. Shiga, *J. Magn. Magn. Mater.* **196–197**, 893 (1999).
22. V. T. Rajan, *Phys. Rev. Lett.* **51**, 308 (1983).
23. A. E. Severing, E. Gratz, B. D. Rainford, and K. Yoshimura, *Physica* **B163**, 409 (1990).
24. I. Felner, I. Nowik, D. Vaknin, U. Potzel, J. Moser, G. M. Kalvius, G. Wortmann, G. Schmiester, G. Hilscher, E. Gratz, C. Schmitzer, N. Pillmayr, K. G. Prasad, H. de Waard, and H. Pinto, *Phys. Rev.* **B35**, 6956 (1987).
25. S. Zherlitsyn, D. Finsterbusch, G. Bruls, B. Wolf, B. Luthi, J. Sarrao, and Z. Fisk, *Poster on the International Conference on Strongly Correlated Electron Systems*, Paris, France (1999) unpublished.
26. A. Yu. Romanov, V. P. Silin, and D. Wagner, *Phys. Lett.* **A226**, 310 (1997).
27. J. M. de Teresa, Z. Arnold, A. del Moral, M. R. Ibarra, J. Kamarad, D. T. Adroja, and B. Rainford, *Solid State Commun.* **99**, 911 (1996).
28. K. Kojima, H. Hayashi, A. Minami, Y. Kasamatsu, and T. Hihara, *J. Magn. Magn. Mater.* **81**, 267 (1989).
29. E. Bauer, *Adv. Phys.* **40**, 417 (1991).

The role of chemical disorder in magnetism of YbInCu₄ compound

I. V. Svechkarev and S. N. Dolya

It is found that the chemical disorder in the compound YbInCu₄, especially in the Yb sublattice, influences significantly its magnetic properties because of the spatial inhomogeneity of the temperature of the first-order valence phase transition. Taking into account the dispersion T_V in the model expression for susceptibility, its evolution is described during disordering of the stoichiometric compound YbInCu₄, under applied pressure and in varied compositions of the solid YbIn_{1-x}Ag_xCu₄ solutions. The behavior of the basic parameters of the system masked by the smearing of the magnetic susceptibility feature in a disordered sample during the phase transition has been detected and explained. In particular, the value of the derivative $dT_V/dx = 203$ K is estimated. The sharp change in the concentration dependence of dispersion and the paramagnetic Curie temperature at $x_c \approx 0.2$ is discussed.