

1. STRESZCZENIE

Początkowo sądzono, że brak mieszalności ma miejsce jedynie dla cieczy znacznie różniących się właściwościami. Wskutek tego, badania zjawiska mikroheterogeniczności koncentrowały się głównie na mieszaninach, w których jednym ze składników była woda. W 2009 roku doniesiono o obserwacji zjawiska mikroheterogeniczności w mieszaninie metanolu z etanolem, czyli cieczy o podobnych właściwościach fizykochemicznych. Obecność separacji na poziomie molekularnym dla tych alkoholi może dowodzić, że zjawisko to ma charakter uniwersalny. Głównym celem mojej pracy doktorskiej było potwierdzenie powyższej hipotezy, poprzez poszukiwanie przejawów mikroheterogeniczności w szeregu mieszanin binarnych o różnym składzie oraz określenie związku pomiędzy strukturą składników mieszaniny a strukturą tworzonej przez nie fazy ciekłej. Do badań wybrano trzy rodzaje mieszanin: (1) gdzie oba składniki mogą tworzyć wiązanie wodorowe (woda/alkohol, alkohol/alkohol), (2) tylko jeden ze składników posiada taką możliwość (alkohol/węglowodór) oraz (3) żaden ze składników nie tworzy wiązań wodorowych (węglowodór/węglowodór). Badania przeprowadzono w całym zakresie ułamków molowych, aby określić zależność między składem mieszaniny a mikroskopową strukturą fazy ciekłej.

Składniki mieszanin zostały dobrane pod względem różnej długości i budowy łańcucha, a w przypadku alkoholi, także ich rzędowości. Jako podstawowe narzędzie badawcze, wykorzystaliśmy spektroskopię oscylacyjną (MIR i NIR), która umożliwia uzyskanie informacji o strukturze i oddziaływaniach międzycząsteczkowych zachodzących w badanych układach. Analiza zjawisk występujących na poziomie molekularnym została wsparta użyciem zaawansowanych narzędzi obliczeniowych, takich jak dwuwymiarowa analiza korelacyjna (2DCOS) oraz metod chemometrycznych (PCA, EFA, MCR-ALS). Techniki te pozwalają na szczegółową analizę nawet niewielkich zmian zachodzących w badanych układach, przy jednoczesnym wykorzystaniu stosunkowo dużych ilości danych, które generują pomiary spektroskopowe. Dodatkowo, wykonano również obliczenia teoretyczne (DFT) struktury wybranych kompleksów w celu lepszego zrozumienia zjawiska mikroheterogeniczności w badanych mieszaninach. Połączenie wyników badań eksperymentalnych z wynikami obliczeń teoretycznych dało możliwość uzyskania pełniejszej charakterystyki badanych układów i przyczyniło się do lepszego zrozumienia natury elementarnych zjawisk fizykochemicznych zachodzących w fazie ciekłej.