(昭和54年8月15日受理)

繊維層フィルターチップによるたばこ煙の濾過*

日本専売公社中央研究所 前田和生・安斎由和子

FILTRATION OF CIGARETTE SMOKE BY FIBROUS FILTER TIP

By Kazuo Maeda and Yuriko Anzai

(The Central Research Institute, Japan Tobacco & Salt Public Corporation, 6-2 Umegaoka, Midori-ku, Yokohama)

Several fibrous filter tips for cigarette smoke have been examined to establish the relation between the filter efficiencies and filter properties: kinds of fiber, fiber denier per filament, cross section of fiber, volume fraction of fiber, weight fraction of fibers and filter making methods.

Filtration efficiency ΔE for the tips is given as

$$\Delta E = 1 - \exp \left\{ k \frac{(1 - \varepsilon_f) L}{\varepsilon_f d_{fm}^n} \right\}$$

where k : filtration coefficient, ε_f : filter porosity, L : filter length, d_{fm} : modified diameter of fiber, n : exponent.

For total particulate matter (TPM) filtration efficiency, k and n are determined as 8.4×10^{-4} and 1.22, respectively. k value for nicotine in cigarette smoke depends on the kinds of fiber in the filter tip.

From the viewpoint of the low resistance - high efficiency, effective filtration is achieved by longer filter length, finer denier per filament, non-circular cross section of fiber and greater affinity between fiber and cigarette smoke.

(Received August 15, 1979)

1. 緒 言

繊維層フィルターによるエアロゾルの濾過に関する理論的ならびに実験的研究は、古くから多くの研究者によって行なわれ、慣性、拡散、さえぎりなど個々の濾過機構についてかなり進展してきたといえる¹⁾。しかし全ての濾過機構を含む繊維層フィルターの総合濾過効率の推定法についてはほとんど実用に供し得るまでには至っていない。

筆者らは、たばこ煙用フィルターの開発あるいは設計上の立場から、繊維層フィルターチップの濾過性能が濾材の段階で推定できる手法の確立を目的として検討を続けてきた。

本報では、前報²⁾の通気抵抗に引続き、繊維層フィル

ターチップの濾過効率に及ぼす繊維の種類、繊維径、断面形状、繊維の混合、充填量、成形方法などの影響について実験的な検討を加え、二、三の知見を得たので報告する。

2. 実 験

2.1 試 料

本実験で用いた試料繊維は、すべて前報²⁾と同様で、表1にその性質を示す。繊維径 d_f 、繊維断面の形状係数 Φ_f 及び修正繊維径 d_{fm} は、それぞれ(1)~(3)式で求めた。

$$d_f = 11.91 \sqrt{d/\rho_f} \quad (1)$$

$$\Phi_f = l^2/4\pi s \quad (2)$$

$$d_{fm} = d_f / \sqrt{\Phi_f} \quad (3)$$

ここで、 d : 単糸繊度 [$g/9 \times 10^5$ cm], ρ_f : 繊維の密度 [g/cm^3], l : 繊維断面の周辺長 [cm], s : 繊維断面積 [cm^2].

* この報文を「たばこ煙用フィルターに関する研究(第14報), Studies on the Filter for Cigarette Smoke (Part 14)」とする。

Table 1 Properties of fibers used

Kinds of fiber	Cross-section	Denier per filament (d) [g/9×10 ⁵ cm]	Density (ρ_f) [g/cm ³]	Fiber diameter (d_f) [μm]	Shape factor (Φ_f) [—]	Modified fiber diameter (d_{fm}) [μm]
Rayon	Regular	0.8	1.54	8.6	(1.89)	(6.3)
	"	1.5	"	11.8	(1.89)	(8.6)
	"	3.0	"	16.6	1.89	12.1
	"	7.0	"	25.4	(1.89)	(18.5)
Vinylon	Regular	1.5	1.26	13.0	(2.40)	(8.4)
	"	3.0	"	18.4	2.40	11.9
Polypropylene	Regular	3.0	0.90	21.7	1.30	19.1
Acetate*	Y	1.7	1.32	13.5	2.38	8.8
	"	1.9	"	14.3	2.58	8.9
	"	2.2	"	15.4	2.63	9.5
	"	2.5	"	16.4	2.88	9.7
	"	3.3	"	18.8	3.07	10.7
	"	4.0	"	20.7	3.23	11.5
Acetate	Regular	4.0	1.32	20.7	2.21	13.9
	Y	"	"	"	3.46	11.1
	I	"	"	"	3.01	11.9

*Crimped

たばこ煙の濾過効率を測定した、モデルフィルター(ランダム充填方式)、アセテートフィルター(トウ方式)、不織布フィルター(シート方式)、レーヨンフィルター(スライバー方式)は、すべて前報²⁾の通気抵抗の測定と同様の試料を用いた。

供試たばこは、重さ 0.80 ± 0.02 gの範囲で選別したhilite紙巻品(長さ:63mm, 円周:25mm)を上記の各フィルター(長さ:17mm, 円周:モデルフィルター24.2mm, その他のフィルター24.7mm)とセロハンテープで接続して用いた。

2.2 吸煙条件

定流量型自動吸煙器³⁾を用い、供試たばこを次の標準条件により、温度 $20 \pm 1^\circ\text{C}$ 、相対湿度 $60 \pm 2\%$ の調和室内で所定の長さまで吸煙させた。

流量:17.5 ml/sec, 吸煙時間:2 sec/回, 吸煙頻度:1 回/min, 吸煙容量:35 ml/回, 吸煙長:5 cm/本, 吸煙本数:4 本/煙捕集用フィルター。

2.3 煙成分の定量

供試たばこの主流煙中の粒子相成分は、極細ガラス繊維フィルター(Cambridge Filter CM113, 直径45mm)で捕集した。TPM(Total Particulate Matter)はたばこの吸煙前後の煙捕集用ホルダーの重量差から求めた。全アルカロイドはTPMの酸性予備蒸留⁴⁾後、アルカリ性で水蒸気蒸留を行ない留出液の紫外外部吸収を測定⁵⁾して求めニコチンとして表示した。

2.4 濾過効率の表示

フィルターで濾過された煙成分量 C_{filt} とフィルターを通過した煙成分量 C_{out} を測定し、直接法によって濾過効率 ΔE を求めた。すなわち、フィルター入口での煙成分量 C_{in} は $C_{filt} + C_{out}$ として求めたが、供試たばこではTPMが43.6 mg/本、ニコチンが1.54 mg/本であった。

$$\Delta E = \frac{C_{in} - C_{out}}{C_{in}} = \frac{C_{filt}}{C_{filt} + C_{out}} \quad (4)$$

3. 実験結果

3.1 繊維種類による影響

繊維の種類がフィルターチップの濾過効率に及ぼす影響を明らかにするため、レーヨン、ビニロン及びポリプロピレン繊維の充填量を変えて調製したモデルフィルターチップの濾過効率をたばこ煙のTPM及びニコチンについて測定した。結果をフィルターの透過率 $(1 - \Delta E)$ と空隙率関数 $(1 - \epsilon_f)/\epsilon_f$ の関係として片対数グラフ上にプロットし、図1及び図2に示す。

たばこ煙のTPM及びニコチンについて、フィルターの対数透過率と空隙率関数 $(1 - \epsilon_f)/\epsilon_f$ の間により直線関係があり、対数透過性の成立することが認められた。モデルフィルターの濾過効率は、繊維及び充填量が同じでも繊維の種類によって異なり、ポリプロピレン繊維がかなり低いこと、またTPMに比べてニコチンでは低い値を示すことが認められた。

Fig. 1 Influence of the kinds of fiber on the TPM filtration efficiency of the model filter tip.

○: Rayon, □: Vinylon,
●: Polypropylene.

Fig. 2 Influence of the kinds of fiber on the nicotine filtration efficiency of the model filter tip.

○: Rayon, □: Vinylon,
●: Polypropylene.

3.2 単糸繊度による影響

単糸繊度の異なる7種類のY断面アセテート繊維を用いたモデルフィルターの $(1 - \Delta E)$ と $(1 - \epsilon_f) / \epsilon_f$ の関係をTPM及びニコチンについて、それぞれ図3及び図4に示す。

すべてのモデルフィルターで $(1 - \Delta E)$ と $(1 - \epsilon_f) / \epsilon_f$ の間に対数透過性の成立すること、また単糸繊度の小さいほどTPM及びニコチンの濾過効率の高いことが認められた。

Fig. 3 Effect of fineness of acetate fiber on the TPM filtration efficiency of the model filter tip.

Fig. 4 Effect of fineness of acetate fiber on the nicotine filtration efficiency of the model filter tip.

3.3 断面形状による影響

単糸繊度が4デニール、断面形状がRegular, Y及びI形のアセテート繊維を用いたモデルフィルターの $(1 - \Delta E)$ と $(1 - \epsilon_f) / \epsilon_f$ の関係をTPM及びニコチンについて、それぞれ図5に示す。

フィルターチップの濾過効率は、繊維の断面形状によって異なり、Y形が高く、I形、Regular形の順に低くなった。

3.4 繊維混合による影響

単糸繊度の異なるビニロンとアセテートあるいはレーヨンの各繊維を混合して充填したモデルフィルターの濾過効率を、TPM及びニコチンについて表2に示す。なお計算による推定は(5)式で行なった。

$$\begin{aligned} \Delta E &= 1 - e^{-k' \frac{(1 - \epsilon_1)}{\epsilon_1}} \cdot e^{-k'' \frac{(1 - \epsilon_2)}{\epsilon_2}} \cdot \dots \dots \dots \\ &= 1 - (1 - \Delta E_1)(1 - \Delta E_2) \dots \dots \dots \end{aligned} \quad (5)$$

Fig. 5 Effect of the cross-sections of acetate fiber on the filtration efficiencies of filter tip for TPM and nicotine in the cigarette smoke.

Fig. 6 Influence of the filter making methods on the nicotine filtration efficiency.

● : Rayon 3d, Sliver method,
▲ : Acetate 4d, Tow method,
■ : Acetate 4d, Non-woven method.

Table 2 Filtration efficiencies of the two-component filter tips

Filter composition	Weight fraction [—]	$(1 - \varepsilon_f) / \varepsilon_f$ [—]	Filtration efficiency [%]			
			TPM		Nicotine	
			Calcd.	Exptl.	Calcd.	Exptl.
Vynylon 1.5d	0.5	0.0471	0.0942	56.9	48.2	49.5
Vynylon 3 d	0.5	0.0471				
Vynylon 1.5d	0.5	0.0471	0.0872	53.0	41.9	43.4
Acetate 4 d	0.5	0.0401				
Vynylon 1.5d	0.5	0.0471	0.0813	65.5	57.2	56.0
Rayon 0.8d	0.5	0.0342				
Vynylon 3 d	0.5	0.0471	0.0872	45.0	35.6	34.2
Acetate 4 d	0.5	0.0401				

ここで、 ΔE : フィルターチップの濾過効率、 ΔE_1 、 ΔE_2 : 各繊維単独のときの濾過効率、 ε_1 、 ε_2 : 各繊維単独のときの空隙率、 k' 、 k'' : 比例係数。

混合割合 x_i 、ただし $x_1 + x_2 + \dots = 1$ 、からなるフィルターチップの濾過効率は、各繊維単独のときの濾過効率が既知であれば(5)式から推定できることがわかった。

3.5 成形方法による影響

単糸繊度 3 デニールのレーヨン繊維を使用し、スライバー方式及びランダム充填方式で作成したフィルターチップのニコチン濾過効率と単糸繊度 4 デニール、Y 断面のアセテート繊維を使用し、トウ方式、シート方式及びランダム充填方式で作成したフィルターチップのニコチン濾過効率について $(1 - \Delta E)$ と $(1 - \varepsilon_f) / \varepsilon_f$ の関係として図 6 に示す。なお、図中のランダム充填方式によるレーヨンフィルター及びアセテートフィルターのニコチン濾過効率はそれぞれ図 2 及び図 4 から引用した。

フィルターチップの濾過効率は同じ繊維を一定の充填率で成形した場合でも成形方法によって大きく異なることが認められた。またランダム充填方式、シート方式、

トウ方式、スライバー方式の順に濾過効率の低くなることが認められた。

4. 考 察

一般に、繊維層フィルターによるエアロゾル粒子の総合濾過効率 ΔE は(6)式で表わされている^{1,6)}。

$$-\ln(1 - \Delta E) = \frac{4(1 - \varepsilon_f)L}{\pi \varepsilon_f d_f} E_f \quad (6)$$

ここで、 E_f は充填層における単一繊維の濾過効率であり、慣性衝突、

拡散、直接さえぎりなどによる個々の濾過機構ごとに広く研究されてきた¹⁾。

たばこ煙用フィルターチップでは、長さ L について、実用的な 0.5~3 cm の範囲で対数透過率 $-\ln(1 - \Delta E)$ との直線関係が確認された⁷⁾。また充填率 $(1 - \varepsilon_f)$ が 0.15 程度、ニコチン濾過効率が 21% までは対数透過率との間に直線関係の成立することが知られている⁸⁾ が、3.1~3.5 項で明らかにしたように空隙率関数 $(1 - \varepsilon_f) / \varepsilon_f$ は、0.2 程度、ニコチン濾過効率として 60% 程度まで対数透過率とよい直線関係にあり、充填率 $(1 - \varepsilon_f)$ の場合より広い範囲で比例することが認められた。この空隙率関数は繊維層フィルターの通気抵抗について、Chen⁹⁾ が抗力理論から導いた空隙率関数と一致している。しかし Clarenburg らは $(1 - \varepsilon_f) / \varepsilon_f$ が通気抵抗の場合適合しないと指摘¹⁰⁾ しているのに対したばこ煙の濾過の場合に適合するのは興味深い。

以上のことから残る繊維径の影響を明らかにするため、まず単位長さ当りの対数透過率と空隙率関数 $(1 - \varepsilon_f) / \varepsilon_f$ との間の比例係数 k_1 を 3.1~3.4 項で得られたすべての

データから求めた。

$$-\frac{\ln(1-\Delta E)}{L} = k_1 \frac{(1-\varepsilon_f)}{\varepsilon_f} \quad (7)$$

k_1 値は、種類、繊維径、断面形状が同じ繊維では充填率が異なってもほぼ同じ値を示したことから、繊維の各充填率における平均 k_1 値と (1)~(3) 式で求めた表 1 の修正繊維径 d_{fm} との関係、TPM 及びニコチンについて、それぞれ図 7、図 8 に示した。TPM の場合、種類、単糸繊維度、断面形状及び充填率の異なる繊維がほぼ一本の線上に集まり、 k_1 と d_{fm} の間には $k_1 = 8.4 \times 10^{-4} / d_{fm}^{1.22}$ の関係の成立することが認められた。したがってモデルフィルターの TPM 透過効率 ΔE_{TPM} は透過係数 $k = 8.4 \times 10^{-4}$ 、指数 $n = 1.22$ とした (8) 式より求められる。

$$\Delta E = 1 - \frac{C_{out}}{C_{in}} = 1 - \exp \left\{ k \cdot \frac{(1-\varepsilon_f)}{\varepsilon_f} \cdot \frac{L}{d_{fm}^n} \right\} \quad (8)$$

これに対し、ニコチンの場合は、同一種類の繊維では単糸繊維度、断面形状及び充填率が異なってもほぼ一本の線上に集まるが、繊維の種類が異なると透過係数が異なった。この理由は、TPM が数多くの煙成分¹¹⁾の凝集体であるために、個々の煙成分と繊維間の親和性の差が煙成分間で互いに相殺しあって透過性能の差として発現しないのに対し、ニコチンは煙中の半揮発性成分であり、濾材繊維とニコチンとの間の親和性の差が透過性能の差として発現したと考えられる。ニコチンと繊維との親和性はビニロン、レーヨン、アセテートの順に低下したが、

Fig. 7 Relationship between the TPM filtration coefficient (k_1 in Eq. 7) and the modified diameter of fiber (d_{fm} in Eq. 3).

○: Rayon, □: Vinylon, ●: Polypropylene
△: Acetate (Crimped, Y section),
▲: Acetate (Regular, Y and I section)

Fig. 8 Relationship between the nicotine filtration coefficient and the modified diameter of fiber.

○: Rayon, □: Vinylon, ●: Polypropylene
△: Acetate (Crimped, Y section),
▲: Acetate (Regular, Y and I section)

このことはアセテートフィルターのニコチン透過性のよいことが従来から認められてきた⁷⁾ことと矛盾しない。

次に、たばこ煙用フィルターは、たばこの香気味上、TPM あるいはニコチンなどの煙成分に対して適当な透過効率を有すると同時になるべく低い通気抵抗を有することが必要であることから、両者の関係について検討した。繊維層フィルターチップの構成要因と通気抵抗の関係は、前報²⁾で各種の繊維層フィルターについて (9) 式の成立することが確認され、モデルフィルターでは $k_2 = 70$ 、 $n = 1.92$ が求められた。

$$K_m = \frac{\Delta P d_{fm}^2 g \rho}{\eta L v} = k_2 (1-\varepsilon_f)^n \quad (9)$$

ここで、 K_m : 修正透過係数 [—], ΔP : 通気抵抗 [$\text{cm H}_2\text{O}$], d_{fm} : 修正繊維径 [cm], g : 重力加速度 [980 cm/sec^2], ρ : 水の密度 [g/cm^3], η : 空気の粘度 [$1.81 \times 10^{-4} \text{ g/cm} \cdot \text{sec}$], L : フィルターチップの長さ [cm], v : 空塔速度 [cm/sec], k_2 : 抵抗係数 [—], $(1-\varepsilon_f)$: 充填率 [—], n : 指数である。抵抗係数 k_2 はフィルター内の繊維の配列、すなわち成形方法によって異なる²⁾ことから、成形方法の異なるフィルターの透過係数 K_m に対し対数透過率をプロットした結果を図 9 に示す。図 6 で明らかにしたように成形方法によってニコチン透過率が異なるが、透過係数に対する透過率は同種の繊維では図 9 に示すようにほぼ 1 本の線上にまとめられ、成形方法によってほとんど影響されないことがわかった。なお 4 デニール、

Fig. 9 Relationship between the nicotine filtration efficiency per filter length and the modified permeability coefficient (K_m in Eq. 9)

- : Rayon 3d, model filter,
- △ : Acetate 4d, model filter
- : Rayon 3d, Sliver method,
- ▲ : Acetate 4d, Tow method,
- : Acetate 4d, Non-woven method.

Y断面のアセテート繊維と3デニールのレーヨン繊維とはほぼ同じニコチン濾過効率を示した。

したがって、通気抵抗を低く保ちながら煙成分の濾過効率を高くするには、成形方法はほとんど影響せず、(8)式及び(9)式が成立することから推論して、フィルターの長さを長くすること、繊維径を細くすること及び異形断面形状とすることが効果的であり、ニコチンのような個々の煙成分に対しては、煙成分に対して親和性の大きい濾材の選択が有効であることがわかった。

5. 結 論

たばこ煙用繊維層フィルターチップのTPM及びニコチン濾過効率と繊維の種類、単糸繊度、断面形状、充填量、繊維混合割合、成形方法などのフィルター構成要因

との関係を明らかにするため、各種のフィルターチップを調製し、実験的な検討を行なった。

その結果、繊維層フィルターチップの濾過効率 ΔE は次のような実験式で示された。

$$\Delta E = 1 - \frac{C_{out}}{C_{in}} = 1 - \exp \left\{ k \cdot \frac{(1 - \epsilon_t) L}{\epsilon_t d_{tm}^n} \right\}$$

モデルフィルターのTPM濾過効率について、濾過係数 $k = 8.4 \times 10^{-4}$ 、指数 $n = 1.22$ が求められたが、ニコチン濾過効率は充填繊維の種類によって影響された。また通気抵抗を低く保ちながら濾過効率を高くするには、フィルターを長くすること、繊維径を細くすること及び異形断面形状とすることが効果的であり、ニコチンのような個々の煙成分に対しては親和性の大きい濾材の選択が有効であることがわかった。

文 献

- 1) C.N. Davies; "Air filtration", Academic Press, London, p. 48 (1973)
- 2) 前田和生, 安斎由和子, 織学誌, **36**, T-14 (1980)
- 3) 阿部始七, 木内 光, 専売中研報, **No.105**, 295 (1963)
- 4) 十倉千枝, 古川靖子, 専売中研報, **No.105**, 295 (1963)
- 5) C. O. Willits, et al., *Anal. Chem.*, **22**, 430 (1950)
- 6) S. K. Friedlander, *Ind. Eng. Chem.*, **50**, 1161 (1958)
- 7) 前田和生, 秋川由紀, 明永康次, 中畑孝彦, 専売中研報, **No.110**, 151 (1968)
- 8) 岡田 隆, 柴山泰子, 中畑孝彦, 専売中研報, **No.105**, 213 (1963)
- 9) C. Y. Chen, *Chem. Revs.*, **55**, 595 (1955)
- 10) P. M. Werner, L. A. Clarenburg, *I&EC. Process Design Develop.*, **4**, 288 (1965)
- 11) R. L. Stedman, *Chem. Revs.*, **68**, 153 (1968)