

## Über eine neue Methode zur Niederschlagung von Tabakrauch in Flüssigkeiten

von H. Barkemeyer und F. Seehofer

Wissenschaftliche Abteilung der British American Tobacco Co. (C.E.) GmbH

Tabakrauch ist ein aus zwei Komponenten bestehendes Aerosol, man unterscheidet zwischen der Gasphase und der Partikelphase. Die Gasphase enthält unter anderem  $N_2$ ,  $O_2$ ,  $CO$ ,  $CO_2$ , also permanente Gase. Die Partikelphase besteht aus kleinen Tröpfchen der Größenordnung 0,1 bis 3  $\mu$ . Entfernt man die Gasphase und sammelt die Tröpfchen in geeigneter Weise, so gelangt man zum Tabakteer, der auch als Rauchkondensat bezeichnet wird.

Für die Gewinnung von Tabakteer aus Tabakrauch existieren zahlreiche Verfahren, die sich auf vier Prinzipien zurückführen lassen:

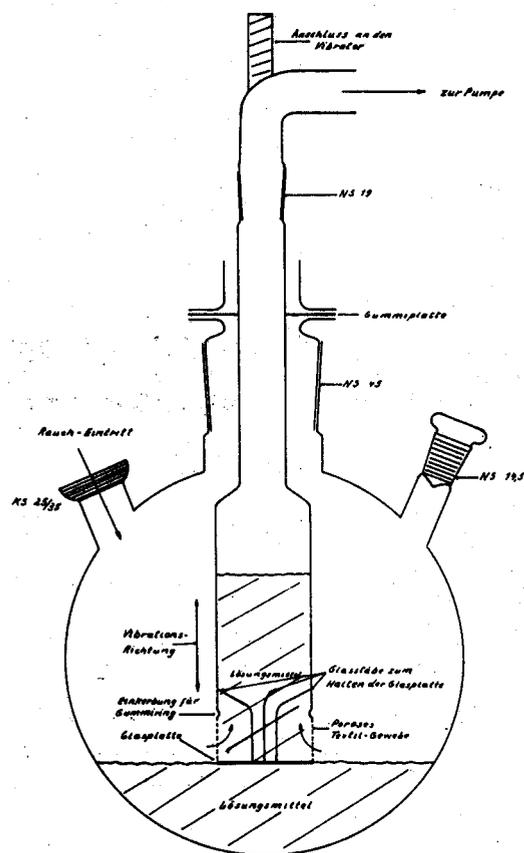
1. Abscheidung der Partikelphase durch Prallwirkung (Watte, Cambridge-Filter, Kapillare),
2. Abscheidung der Partikelphase durch Kühlung, evtl. kombiniert mit der Prallwirkung (Kühlfalle),
3. Abscheidung der Partikelphase im elektrischen Feld (elektrostatische Niederschlagsverfahren),
4. Auffangen der Partikelphase in geeigneten Lösungsmitteln (Frittenwaschflasche, Waschturm usw.).

Sowohl für chemische als auch für biologische Untersuchungen ist es von größter Bedeutung, Sekundär-Reaktionen im Tabakteer, die zur Bildung von Kunstprodukten führen, auszuschließen. Im Tabakrauch sind zahlreiche, hochaktive Verbindungen nachgewiesen worden, wie z. B. freie Radikale (1), niedere Aldehyde und Ketone (2), ungesättigte Verbindungen usw. (2). Die Möglichkeit zu Sekundär-Reaktionen wächst mit zunehmender Temperatur, zunehmender Konzentration, Einwirkung von  $O_2$  und Licht.

Auf Grund theoretischer Überlegungen erschienen die unter 4. genannten Methoden der Rauchniederschlagung in Lösungsmitteln am besten geeignet zur Gewinnung eines möglichst „rauchähnlichen“ Tabakteers. Für biologische Versuche hat sich Aceton als Lösungsmittel für Tabakteer bewährt (3). Aus diesem Grunde führten wir auch unsere Untersuchungen mit Aceton durch.

Die Verwendung von Gaswaschflaschen mit Eintauchfritten führte nicht zum Ziel. Die Glasfritte verstopft nach kurzer Zeit durch in Aceton unlösliche Paraffine. Für die Gewinnung von Tabakteer in präparativem Maßstab ist deshalb das Verfahren gänzlich ungeeignet. Der Einsatz von Waschtürmen (4) ist aufwendig und verlangt größere Lösungsmittelmengen. Eine Kühlung der Waschtürme ist experimentell schwierig.

Bei der von uns neu entwickelten Apparatur wird das Lösungsmittel in einem 2-l-Rundkolben durch eine 50-hz-Vibration versprüht. Dadurch wird eine innige Durchmischung mit dem Rauch-Aerosol erzielt und die Partikelphase in Lösung gebracht. Evtl. noch vorhandenes Aerosol wird in fein verteilter Form in Aceton eingeleitet und dadurch gelöst.



#### BESCHREIBUNG DER APPARATUR\*

Das Auffanggefäß besteht aus einem dreifach tubulierten 2-l-Rundkolben mit NS 45, NS 14,5 und KS 20/35. Durch den NS 45 wird der Vibrationskörper eingeführt, der NS 14,5 dient zum Einfüllen bzw. zum Abhebern des Lösungsmittels oder der Teerlösung und über den KS 20/35 wird die Verbindung zur Rauchmaschine hergestellt (Abb. 1). Der Vibrationskörper besteht aus einem großlumigen Glasrohr, an dessen unterem Ende mittels dreier Glasstäbe eine Glasplatte angeschmolzen ist. Über die Glasplatte wird ein Stück porösen Baumwollstoffs gelegt und am unteren Ende des Vibrationsrohres mit Hilfe eines Gummiringes befestigt.

Die Abdichtung des Vibrationsrohres erfolgt durch eine Gummiplatte, die zwischen zwei Glasflanschliffen eingepreßt ist. Der Erzeugung der Vibration dient ein geeigneter Vibrator, z. B. vom Typ „Vibro-Mischer“, der mit 50 hz arbeitet.

Es werden ca. 100 bis 400 ml Lösungsmittel in den Rundkolben eingefüllt und nach Einschalten der Saugpumpe (17,5 ml/sec) der Vibrationseinsatz so eingestellt, daß das Lösungsmittel etwa 5–7 cm hochsteigt, bis Luft eingesaugt wird. In dieser Stellung wird dann der Vibrator angeschlossen und die optimale Amplitude eingestellt, die man leicht am Sprüheffekt im Inneren des Rundkolbens erkennen kann. Nach Anschluß an die Rauchmaschine ist das Gerät betriebsfertig.

Es empfiehlt sich, das Lösungsmittel durch Einstellen des Auffangkolbens in ein Kältebad zu kühlen, da damit Lösungsmittelverluste vermieden werden und die Auffangoperation noch schonender verläuft. Durch Abdecken mit einer Gummiplatte kann auch der Einfluß des Lichtes ausgeschaltet werden.

#### Ergebnisse

Die Wirksamkeit der Apparatur ohne Kühlung liegt bei einem kontinuierlichen Rauchstrom von 17,0 ml/sec und 100 ml Aceton bei 99,93%. Bei Einsatz von 250 ml Aceton lassen sich ca. 200 Cigaretten abrauchen, bis durch stärkeres Schäumen Störungen auftreten können. Die erhaltenen Teerlösungen sind braun-gelb und durch in Aceton unlösliche paraffinartige Substanzen getrübt. Das suspendierte Material ist nach Filtration farblos und in Cyclohexan oder Benzol völlig löslich und frei von polycyclischen Kohlenwasserstoffen. Das Auftreten hochpolymerer, dunkelbrauner Substanzen, die nur in Methanol löslich sind, wurde nicht beobachtet (Sekundär-Produkte).

#### Vorzüge der neuen Niederschlagsmethodik

Die Partikelphase wird unter schonendsten Bedingungen von der Gasphase getrennt. Die Apparatur besteht fast ausschließlich aus Glas, ist leicht zu reinigen und erlaubt die Anwendung extrem

\* Firma Heinrich Borgwaldt, Hamburg-Bahrenfeld, Friesenweg 4

tiefer Temperaturen. Durch Arbeiten unter Lichtausschluß in inerter Gasatmosphäre sowie durch Variation des Lösungsmittels läßt sich das Verfahren beliebig verfeinern.

Wir beabsichtigen, durch chemische und biologische Versuche das neue Verfahren der Rauchniederschlagung mit den bisher üblichen Methoden der Tabakteergewinnung zu vergleichen.

#### ZUSAMMENFASSUNG

Es wird über eine neue Apparatur zum Auffangen der Partikelphase des Tabakrauches in Flüssigkeiten unter schonendsten Bedingungen berichtet. Das Verfahren wurde im Hinblick auf die Vermeidung von Sekundär-Reaktionen entwickelt und ist beliebig variabel. Die beschriebene Apparatur ist sehr einfach, besteht ausschließlich aus Glas und ist deshalb leicht zu reinigen. Die Partikelphase wird bei einer permanenten Strömungsgeschwindigkeit von 17,5 ml/sec unter Verwendung von Aceton auch ohne Kühlung praktisch quantitativ erfaßt.

#### SUMMARY

A new apparatus is described for collecting the particle phase of tobacco smoke in liquids in the most careful way. The method was developed in order to avoid secondary reactions and is infinitely variable. The described apparatus is simple, and consists nearly entirely of glass so that cleaning is simplified. Even without cooling the particle phase can be trapped quantitatively in acetone at a permanent flow rate of 17.5 ml/sec.

#### RÉSUMÉ

L'appareil décrit permet le piégeage de la phase particulaire de la fumée du tabac dans des liquides dans la manière la plus soigneuse. La méthode a été développée en vue d'éviter des réactions secondaires et permet n'importe quelle variation. L'appareil décrit est simple et fait presque entièrement de verre ce qui facilite tout nettoyage. Même sans refroidissement les matières particulaires peuvent être captées quantitativement dans l'acetone à une vitesse d'écoulement permanente de 17.5 ml/sec.

#### LITERATUR

1. Lyons, M. J., et. al, Nature (London) 181 (1958) 1003.
2. Johnstone, R. W. und Plimmer, J. R., Chem. Vevw. 59, (1959) 885.
3. Wynder, E. L., et. al., Cancer 10, (1957) 1193.
4. Bonnet, J., und Neukomm, S., Helv. Chim. Acta 39, (1956) 1724.

*Anschrift der Verfasser: Wissenschaftliche Abteilung der British American Tobacco Co. (C.E.) GmbH, Hamburg 36, Esplanade 39*

#### DISKUSSION

*Dr. Grob:* Die Beobachtung von *Dr. Barkemeyer*, daß beim Auffangen in geeigneten Lösungsmitteln ca. 30% weniger Rauchkondensat gewonnen wird, als bei der trockenen, elektrostatischen Abscheidung, stimmt mit unseren Feststellungen überein. Der Gesamtrauch ist zweifellos eine hochreaktionsfähige Mischung. Neben tiefen Temperaturen ist die Verdünnung sicher das wirksamste Mittel zur Verzögerung von Reaktionen. Ich halte es für unlogisch, eine Riesenarbeit zur Verfeinerung der trockenen Rauchabscheidung zu leisten, angesichts der Tatsache, daß dabei im Ausmaß von 30% mit Artefakten zu rechnen ist. Wir haben deshalb auch für die Routinebestimmung die feuchte Abscheidung beibehalten, deren Reproduzierbarkeit noch wesentlich zu verbessern ist, wenn die Waschflaschen in Eiswasser gestellt werden.

*Prof. Cuzin:* Bei Rauchabscheidung durch Kühlung in flüssiger Luft können Alkaloide verlorengehen, von denen 10% in der Dampfphase enthalten sind.

Bei der Rauchniederschlagung ohne jegliches Lösungsmittel, z. B. durch Kapillarkondensation, werden Nebenreaktionen vermieden.

*Dr. Wahl:* Dem Vorschlag von *Dr. Grunwald*, ein Zweiphasengemisch von Benzol/Wasser oder Cyclohexan/Wasser zum Auffangen der Partikelphase einzusetzen, ist entgegenzuhalten, daß damit Kondensationen bewirkt werden können. Säuren sollten tunlichst vermieden werden, denn Phenole verbinden sich mit Aldehyden zu Bakeliten, Pyrrol ergibt bei Gegenwart von Säuren Pyrrol-Rot und ähnliche Verbindungen.