

分担研究報告書

Deans Switch 型 SiFlow を用いた血中ダイオキシン類測定における ソルベントカット大量注入法の開発

研究分担者	香月 進	福岡県保健環境研究所	所長
研究協力者	梶原 淳睦	福岡県保健環境研究所	保健科学部長
	堀 就英	福岡県保健環境研究所	生活化学課 生活化学課長
	平川 博仙	福岡県保健環境研究所	生活化学課 専門研究員
	安武 大輔	福岡県保健環境研究所	生活化学課 研究員
	新谷 依子	福岡県保健環境研究所	生活化学課 主任技師
	小木曾 俊孝	福岡県保健環境研究所	生活化学課 主任技師
	飛石 和太	福岡県保健環境研究所	廃棄物課 専門研究員

研究要旨

高分解能ガスクロマトグラフ質量分析計に SCLV の代替システムとして Deans Switch 型 SiFlow を装着し、従来と同等の血液中ダイオキシン類の高感度測定が可能か検討した。その結果、血液中のダイオキシン類測定において Deans Switch 型 SiFlow は、SCLV と同様の機構で正確に作動することが確認され、標準物質及びコントロール試料の繰り返し測定では再現性の良い定量値が得られた。SiFlow は従来法と比べてデッドボリュームが非常に小さく、かつコンタミネーションの影響も少ないという利点がある。装置の取り扱いも容易であり、SCLV の代替として有用であることが示された。

A . 研究目的

1968 年に発生した油症はポリ塩化ビフェニル (PCB) およびダイオキシン類による複合中毒事件である。事件から 40 年以上経過した近年でも、2012 年 9 月に「カネミ油症患者に関する施策の総合的な推進に関する法律」が施行され、同年 12 月に油症診断基準に「同居家族の油症患者に関する条件」が追補され、油症を取り巻く環境は大きく変遷している。

Polychlorodibenzofuran (PCDF) は毒性が高く油症の主な原因物質であり、2004 年に血液中の 2,3,4,7,8-pentachloro-

dibenzofuran (2,3,4,7,8-PeCDF) 値が診断基準に追加され、油症検診において血液中ダイオキシン類の測定が行われている。

ダイオキシン類測定では高分解能ガスクロマトグラフ質量分析計(以下、HRGC/HRMS)が使用されている。戸高らは SGE 社製ソルベントカット大量注入システム(以下、SCLV)を備えた HRGC/HRMS を用いて高感度なダイオキシン類測定を実現させ、少量の血液からのダイオキシン類測定を可能とした¹⁾。さらに、戸高らはアイスティサイエンス社製胃袋型インサート付大量注入装置(以下、LVI)と SCLV を組み合わせ(以下、LVI-SCLV)

装置への注入量を 20 倍に増大させ、血中ダイオキシン類測定のためのさらなる簡略化、高感度化を可能とした²⁾。上記のように、SCLV は油症検診における血液中ダイオキシン類測定のキーデバイスの一つである。

LVI-SCLV では、下記の 4 つの工程で試料を MS に導入する仕組みになっている。

LVI により導入された試料はプレカラムで保持され、GC オープンの昇温により、プレカラムにダイオキシン類を保持させたまま大量の溶媒や低沸点化合物をパージラインから排出させる。パージラインを閉止し、ダイオキシン類をコールドトラップへ導入する。すべてのダイオキシン類をコールドトラップした後、パージラインを開放し、プレカラムに残存した夾雑物を排出する。同時に、オープンを降温させ、コールドトラップを解除し、再度オープンを昇温することでダイオキシン類を MS 部に導入する。

しかし、LVI-SCLV システムではキャピラリーカラム等の接続箇所が多く、漏れの可能性が高く、漏れが生じた場合、その原因を除去することに多くの労力を必要とする。また、SCLV はすでに販売中止となっているため、血液中のダイオキシン類を高感度に測定するには、代替となるシステムが必要である。

Deans Switch は圧力バランスによるバルブプレススイッチであり、複数のカラムを用いた分析、特定成分のハートカットや GC 分取、および 2 つのカラムへの流路切り替えに利用可能である^{3)、4)}。近年、半導体技術の応用によってガスクロマトグラフに利用可能なマイクロフローデバイスが開発されている。Deans Switch 型のマイクロフローチャンネルデバイスも販売されており、その

応用例も報告されている⁵⁾。我々は、Deans Switch 型マイクロフローチャンネルデバイスとして図 1 に示すような Trajan 社製の Deans Switch 型 SiFlow (以下、SiFlow) を使用し、SCLV と同等な血液中のダイオキシン類の高感度測定が可能か検討した。

B . 研究方法

1 . 試薬

ダイオキシン類分析に使用した有機溶媒およびその他の試薬類は関東化学社製のダイオキシン類分析用を用いた。活性炭カラムは、ナカライテスク社から購入した活性炭と無水硫酸ナトリウムを混合し、調製された。ダイオキシン類分析のクリーンアップスパイクとして毒性等価係数 (TEF) を持つダイオキシン類の¹³C-ラベル化体を用いた。これらは Wellington Laboratories 社から購入した。シリンジスパイクとして 1,2,3,4-tetrachlorodibenzo-*p*-dioxin-¹³C (Wellington Laboratories 社製) を用いた。さらに、ダイオキシン類の定量用標準物質として Wellington Laboratories 社製混合標準溶液を用いた。また、コントロール試料として日水製薬社製の精度管理用凍結プール血清、L-コンセーラ II を使用した。

2 . 分析方法

ヒト血液中のダイオキシン類の抽出、精製は戸高らの報告に従って実施した¹⁾。試料約 5 g を精秤し、クリーンアップスパイクを添加し、高速溶媒抽出により血液からダイオキシン類を抽出した。抽出液を硫酸処理、硝酸銀シリカゲルカラムにより精製した。次いで、活性炭カラムにより不純物を除去し、トルエンによりダイオキシン類

を分画した。溶出したトルエンを濃縮し、シリジスパイクを添加し、約 200 μ L のトルエン溶液を測定検液とした。

ダイオキシン類濃度測定には高分解能ガスクロマトグラフ質量分析計(HRGC/HRMS) HP6890 (Agilent Technologies 社製) / Autospec Premier(Waters 社製)を用いた。GC 注入口には胃袋型インサートを用いた大量注入装置であるアイスティサイエンス社製の LVI-S200 (以下、LVI) を使用した。また、ソルベントカット大量注入法として LVI および SiIFlow を結合させた HRGC/HRMS の測定システム (以下、LVI-SiIFlow) を用いた。LVI-SCLV では、プレカラムには SGE 社製の BPX-5 (0.25 mm \times 7 m、膜厚 0.25 μ m) 分析カラムには SGE 社製の BPX-Dioxin-1 (0.15 mm \times 30 m) を使用した。ダイオキシン類の測定条件を表 1 に示す。ダイオキシン類測定では、測定検液 100 μ L を LVI に導入し、分解能 10000 以上で定量した。

(倫理面への配慮)

血液中ダイオキシン類の測定は、本人の同意が得られた者のみを対象とした。研究成果の発表に際しては統計的に処理された結果のみを使い、個人を特定できるような情報は存在しない。また、本研究は「福岡県保健環境研究所疫学研究倫理審査委員会要綱」に基づき、審査を受け承認されたものである (受付番号第 28-1 号平成 28 年 6 月 16 日承認)。

C . 研究結果・考察

1 . LVI-SiIFlow と LVI-SCLV (従来法) の比較

図 2 に LVI-SiIFlow の概略図を示す。LVI-SiIFlow では、装置に注入された試料

は先に述べた LVI-SCLV と同様に 4 つの工程を経て MS 部に導入される。

LVI-SiIFlow システムにおいて 0.0025 ng/mL のダイオキシン類標準溶液を 100 μ L 注入して得られたマスクロマトグラムと、LVI-SCLV システムにおいて得られたマスクロマトグラムを図 3 に示す。なお、図 3 では測定対象のダイオキシン類で最初に検出される tetrachlorobiphenyls (TeCBs)、診断基準に使用されている pentachlorodibenzofurans (PeCDFs) および最後に検出される octachlorodibenzofuran (OCDF) のマスクロマトグラムを示した。両システムの比較が容易なように同じ m/z のマスクロマトグラムを並列して記載した (図 3)。一般的なキャピラリーカラムでは、測定対象物質の中で 3,4,4',5-tetrachlorobiphenyl (以下、PCB81) が最も早くプレカラムから溶出し、OCDF が最後に溶出する。SCLV では、プレカラムから溶出する PCB81 から OCDF までを分析カラムへ導き、それ以外の夾雑物は系外へ排出される。図 3 に示すように両システムとも同様なマスクロマトグラムが得られたことから、SiIFlow でも SCLV と同じ機構で作動していることが分かった。両システムでは大量な溶媒を注入しているため、溶媒蒸気が質量分析計の真空度に影響を与える可能性があるが、両システムとも真空度の変動が非常に少なく、SiIFlow においても溶媒カットが機能していることが分かった。

SiIFlow の流路の内壁は高不活性化処理されており、ダイオキシン類が吸着しにくい。また、SiIFlow ではデッドボリュームが非常に小さい構造となっており、キャピラリーカラムとの接続には金属製フェラル

の SiITite が使用されているため、コンタミネーションのリスクが低減された。さらに、SiITite FingerTite により手締めで簡単に接続が可能であり、SCLV と比較して接続部分が少なく、測定システムでの漏れのリスクが低減された。

2. LVI-SiIFlow を用いた標準物質およびコントロール試料中のダイオキシン類測定における再現性評価

我々は、血液中ダイオキシン類の測定において 1 バッチあたりコントロール試料を含む 24 試料を同時に抽出、精製を行い、HRGC/HRMS で分析している。その際、毎回、標準物質およびコントロール試料を HRGC/HRMS で測定し、解析結果から各測定の妥当性を評価している。ここでは、LVI-SiIFlow システムを用いて 8 バッチの血液中ダイオキシン類を測定したときの各バッチの標準物質の相対感度係数（以下、RRF）を表 2 に、各バッチのコントロール試料の測定結果を表 3 に示す。なお、コントロール試料の濃度は、脂肪量測定における誤差を除外するため、湿重量ベースで算出した。

血液中のダイオキシン類測定暫定マニュアル⁶⁾では、RRF の変動は前回の測定時と比較して $\pm 20\%$ 以内であることと規定されている。Table 2 では、8 バッチの標準物質の測定結果から得られた各同族体の RRF の平均値も示し、各測定における RRF は平均値と比べ $-10.5\% \sim 12.5\%$ の範囲内にあり、 $\pm 20\%$ 以内であった。したがって、SiIFlow においても再現性良くダイオキシン類の安定な測定が可能であった。

表 3 に 8 バッチ分のコントロール試料の測定結果と各同族体の平均値、標準偏差 (SD)

および相対標準偏差 (CV) を示す。血液中のダイオキシン類測定暫定マニュアルでは、二重測定の結果は各同族体の実測濃度と実測濃度の平均値との差が 50% 以内であることを要求している。表 3 に示すように各同族体の CV は最小で 4.1% 、最大で 12.1% であり、SiIFlow でも再現性の良い血中ダイオキシン類測定が可能であった。SiIFlow ではハートカットのタイミングのズレにより PCB81 および OCDF 濃度が減少する可能性があるが、これらの同族体においても変動は小さかった。また、TEF を持つダイオキシン類の総濃度および毒性等価量 (TEQ) の相対標準偏差はそれぞれ 3.0% および 3.2% であり、高い再現性を示した。また、このコントロール試料は戸高らが LVI-SCLV で測定し報告したものと同様であり、そのダイオキシン類濃度は 0.063 pg-TEQ/g であり²⁾、今回我々が報告した濃度 (0.067 pg-TEQ/g) と同等であった。以上のことから、SiIFlow はこれまで使用してきた SCLV に代替可能であり、血中のダイオキシン類の測定に適用できると考えられる。

D. 結論

Deans Switch 型 SiIFlow を使用し、SCLV と同等に血中のダイオキシン類の高感度測定が可能か検討した。血液中のダイオキシン類測定において Deans Switch 型 SiIFlow は、従来から使用している SCLV と同様の機構で作動し、標準物質およびコントロール試料の測定でも再現性の高い結果が得られた。SiIFlow は従来法と比べて、デッドボリュームが非常に小さく、コンタミネーションの影響が少ない。取り扱いも容易であり、SCLV の代替として適用可能であることが証明された。

E . 研究発表

1 . 論文発表

- 1) Yasutake D, Tobiishi K, Hirakawa H, Shintani Y, Kogiso T, Hori T, Kajiwara J, Katsuki S, Mitoma C, Furue M. Application of a solvent-cut large-volume injection system using Deans switch-type SilFlow in a dioxin analysis of human blood. *Organohalogen Compounds*. 2017. in press.

2 . 学会発表

- 1) Yasutake D, Tobiishi K, Hirakawa H, Shintani Y, Kogiso T, Hori T, Kajiwara J, Katsuki S, Mitoma C, Furue M. Application of a solvent-cut large-volume injection system using Deans switch-type SilFlow in a dioxin analysis of human blood. 37th International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (POPs), Vancouver , Canada, 2017 , August 20-25.
- 2) Hirakawa S, Miyawaki T, Hori T, Kajiwara J, Katsuki S, Hirano M, Yoshinofuchi Y, Iwata H , Mitoma C, Furue M. Characteristics of PCB congeners accumulated in Yusho patients and estimation of their cytochrome P450-dependent metabolism by in silico docking simulation. 37th International Symposium on Halogenated Persistent Organic Pollutants (POPs), Vancouver , Canada, 2017 , August 20-25.

- 3) 堀 就英 ,平川博仙 ,新谷依子 ,宮脇 崇 ,梶原淳睦 ,香月 進 ,岸 玲子 ,古江増隆 ,血液中ダイオキシン類分析のクロスチェック (2016 年度) 第 26 回環境化学討論会(静岡市)、2017 年 6 月 7-9 日

E . 知的財産権の出願・登録状況

なし。

参考文献

- 1) Todaka T : New protocol of dioxins analysis in human blood. *Fukuoka Acta Med.* 94 : 148-157, 2003.
- 2) Todaka T, Uchi H, Hirakawa H, Kajiwara J and Furue M : Development of a newly large-volume injection system for dioxin determinations in blood of yusho patients. *Fukuoka Acta. Med.* 104 : 110-117, 2013
- 3) Deans D R : An improved technique for back-flushing gas chromatographic columns. *J.Chromatogr. A.* 18 : 477-481, 1965.
- 4) Deans D R : Use of heart cutting in gas chromatography : A review. *J. Chromatogr. A.* 203 : 19-28, 1981.
- 5) Boeker P, Leppert J, Mysliwietz B, and Lammers P : Comprehensive theory of Deans ' switch as a variable flow splitter: fluid mechanics, mass balance, and system behavior. *Anal. Chem.* 85 : 9021-9030, 2013.
- 6) 厚生労働省医薬局審査管理課:血液中のダイオキシン類暫定マニュアル(平成 12 年 12 月)

図1 Deans Switch 型 SilFlow の外観と形状

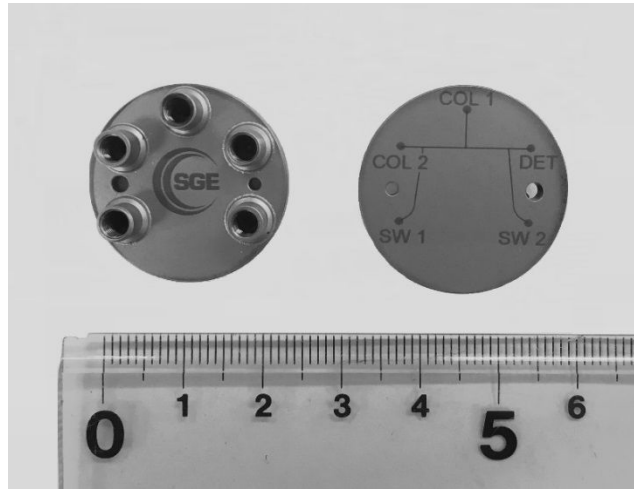


図2 LVI-SilFlow システムを装着した HRGC/HRMS の概要

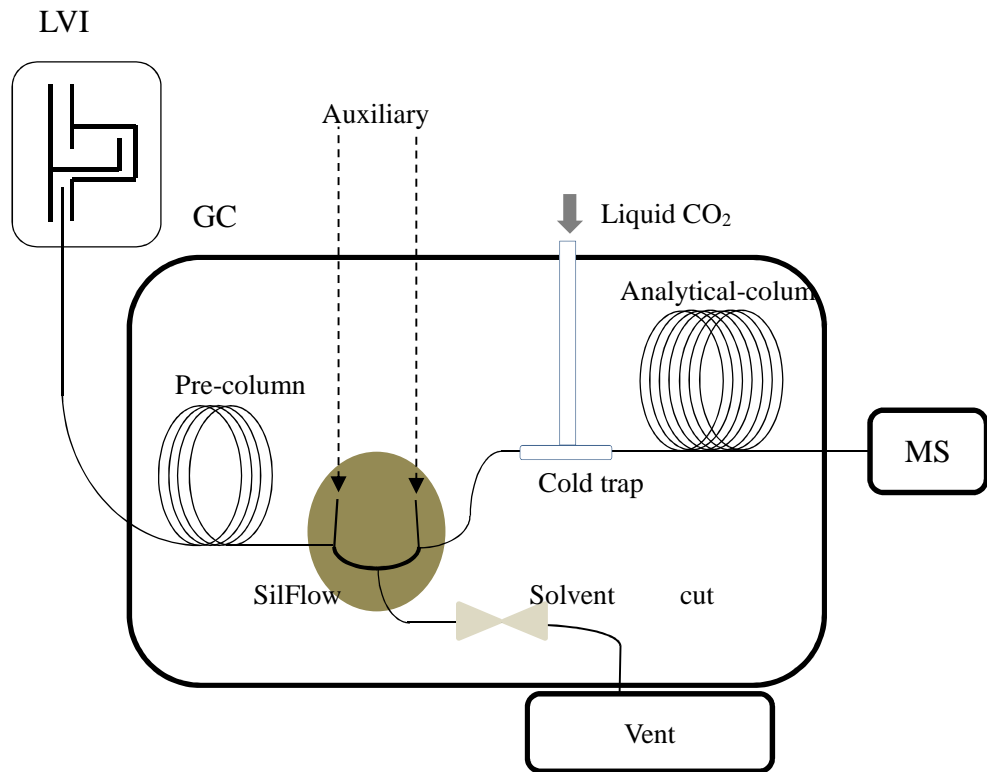


表 1 LVI、SiFlow 及び HRGC/HRMS の使用条件

PTV conditions					
PTV	LVI-S200 (AiSTI science Co. Ltd.)				
Purge time	1 min				
Vent flow	300 mL/min				
Programmmed temperature	Rate	Temperature	Hold		
	1st	120 /min	120	1 min	
			290	20.3 min	
GC conditions					
Gas chromatograph	Model 7890A (Agilent Technologies Ltd.)				
Pre-column	BPX-5 (SGE Ltd.) (7 m × 0.25 mm I.D. × φ0.25 μm)				
Analytical column	BPX-DIOXIN-I (SGE Ltd.) (30 m × 0.15 mm I.D.)				
Carrier gas	He				
Oven temperature		Rate (/min)	Temperature ()	Hold (min)	
			160	4.5	
	1st	20	300	12	
	2nd	70	195	0.5	
	3rd	3.5	300	1.5	
Inlet pressure		Rate (kPa/min)	Pressure (kPa)	Hold (min)	
			469	4.5	
	1st	302	620	18.5	
	2nd	112	508	1	
	3rd	3.73	620	1.5	
Auxiliary pressure #1		Rate (kPa/min)	Pressure (kPa)	Hold (min)	
			445	4.5	
	1st	333	610	18.5	
	2nd	128	482	1	
	3rd	4.25	690.5	1.5	
Auxiliary pressure #2		Rate (kPa/min)	Pressure (kPa)	Hold (min)	
			443.5	4.5	
	1st	333	610	18.5	
	2nd	128	482	1	
	3rd	4.27	610		
MS conditions					
Mass Spectrometer	AutoSpec Premier (Waters Co. Ltd.)				
Ion source temperature	280				
Ionization voltage	28 eV				
ionization current	750 μA				
Ionization mode	EI+				
Accelerating voltage	8 kV				
Resolution	>100000				
Monitor ion (m/z)	Native		Labeled		
	TeCDDs	319.8965	321.8936	331.9368	333.9339
	PeCDDs	353.8576	355.8546	365.8978	367.8949
	HxCDDs	387.8186	389.8156	399.8589	401.8559
	HpCDDs	423.7767	425.7737	435.8169	437.814
	OCDD	457.7377	459.7348	469.778	471.775
	TeCDFs	303.9016	305.8987	315.9419	317.9389
	PeCDFs	339.8597	341.8568	351.9	353.897
	HxCDFs	373.8207	375.8178	385.861	387.858
	HpCDFs	407.7818	409.7788	419.822	421.8191
	OCDF	441.7428	443.7398	453.783	455.7801
	TeCBs	289.9224	291.9194	301.9626	303.9597
	PeCB	323.8834	325.8804	335.9237	337.9207
	HxCB	357.8444	359.8415	369.8847	371.8817

図3 TeCB、PeCB 及び OCDF 各標準品のマスクロマトグラム

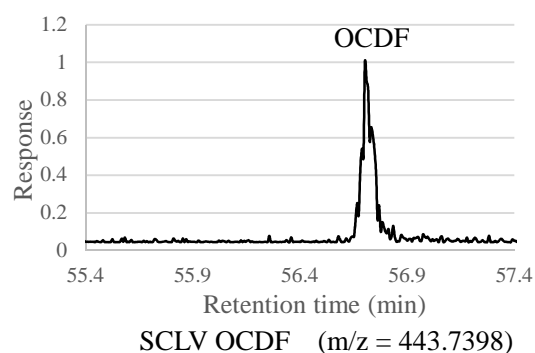
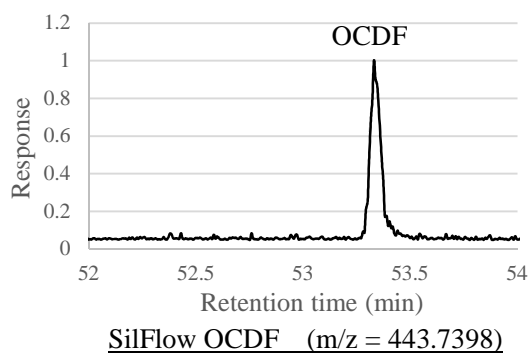
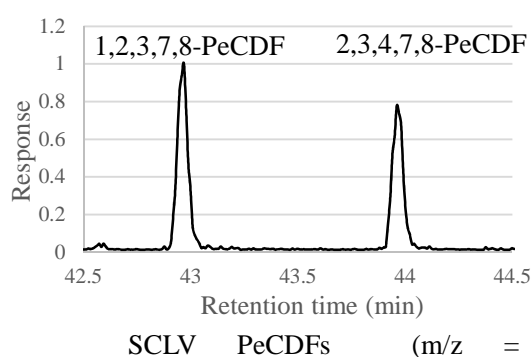
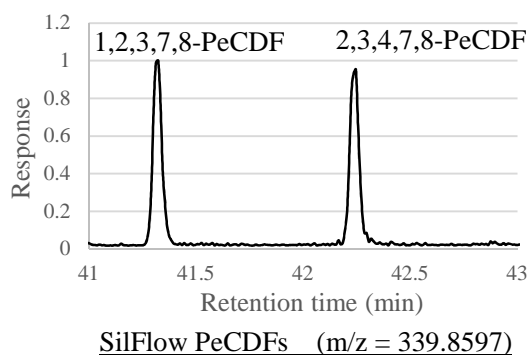
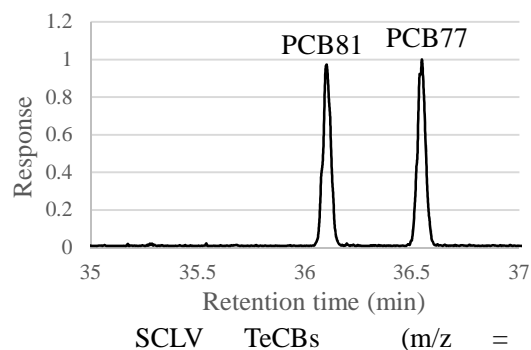
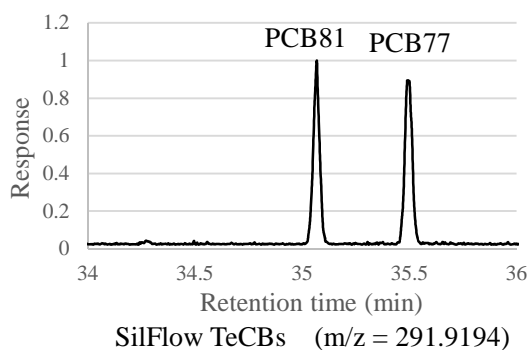


表2 LVI-SiIFlow システムを用いたダイオキシン類測定における相対感度係数の再現性

Congener	Relative Response Factor (RRF)								Average	Min. RRF / Average (%)	Max. RRF/ Average (%)
	n = 1	n = 2	n = 3	n = 4	n = 5	n = 6	n = 7	n = 8			
2,3,7,8-TCDD	1.013	0.995	1.039	1.006	0.884	0.986	1.001	0.976	0.988	89.5	105.2
1,2,3,7,8-PeCDD	0.923	0.888	0.907	0.821	0.952	0.903	0.882	0.890	0.896	91.6	106.3
1,2,3,4,7,8-HxCDD	0.908	0.987	0.937	0.948	0.969	0.904	0.885	1.005	0.943	93.9	106.6
1,2,3,6,7,8-HxCDD	0.786	0.819	0.857	0.920	0.880	0.845	0.805	0.905	0.852	92.2	107.9
1,2,3,7,8,9-HxCDD	0.794	0.903	0.899	0.895	0.877	0.908	0.920	1.008	0.901	88.1	112.0
1,2,3,4,6,7,8-HpCDD	1.160	1.040	1.094	1.102	1.170	1.187	1.081	1.087	1.115	93.2	106.5
OCDD	0.990	1.033	1.046	1.088	0.971	1.011	1.053	1.197	1.049	92.6	114.2
2,3,7,8-TCDF	0.920	1.118	0.925	0.999	0.976	1.003	0.964	0.971	0.984	93.4	113.6
1,2,3,7,8-PeCDF	0.934	0.912	0.932	1.022	0.911	1.012	0.921	0.898	0.943	95.3	108.4
2,3,4,7,8-PeCDF	1.068	1.008	0.995	0.955	1.058	1.104	0.981	1.043	1.026	93.1	107.5
1,2,3,4,7,8-HxCDF	0.956	1.063	1.007	1.000	0.939	0.968	0.945	0.992	0.984	95.4	108.0
1,2,3,6,7,8-HxCDF	0.912	0.935	1.008	0.932	0.988	0.924	0.974	0.909	0.948	95.9	106.4
2,3,4,6,7,8-HxCDF	1.038	1.041	1.006	1.032	1.014	1.121	1.044	1.180	1.060	94.9	111.4
1,2,3,7,8,9-HxCDF	1.049	1.065	1.086	0.999	1.097	1.028	1.046	1.070	1.055	94.7	104.0
1,2,3,4,6,7,8-HpCDF	0.927	1.003	0.944	1.013	0.917	1.046	0.896	0.939	0.961	93.3	108.9
1,2,3,4,7,8,9-HpCDF	1.049	1.014	1.094	1.066	0.974	0.989	0.984	0.949	1.015	93.5	107.8
OCDF	0.952	0.978	1.061	0.902	0.901	0.985	0.896	0.870	0.943	92.2	112.5
344'5'-TCB(PCB81)	0.936	0.950	0.916	0.947	0.916	0.950	0.932	0.966	0.939	97.5	102.9
33'4'4'-TCB(PCB77)	1.025	1.025	1.021	1.019	1.046	1.006	1.027	1.062	1.029	97.8	103.2
33'44'5'-PenCB(PCB126)	1.132	1.037	1.110	1.102	1.063	1.084	0.979	1.066	1.072	91.3	105.6
33'44'55'-HxCB(PCB169)	0.926	0.845	0.954	0.927	0.888	0.995	0.897	0.973	0.926	91.3	107.5

表3 LVI-SiIFlow システムを用いたコントロール試料分析におけるダイオキシン類濃度の再現性

Congeners	Concentrations (pg/g)								Mean	SD	CV
	n = 1	n = 2	n = 3	n = 4	n = 5	n = 6	n = 7	n = 8			
2,3,7,8-TCDD	0.0042	0.0043	0.0046	0.0040	0.0046	0.0042	0.0045	0.0040	0.0043	0.00022	5.0%
1,2,3,7,8-PeCDD	0.016	0.019	0.017	0.020	0.018	0.016	0.019	0.018	0.018	0.0012	6.7%
1,2,3,4,7,8-HxCDD	0.021	0.017	0.022	0.020	0.018	0.019	0.017	0.022	0.020	0.0018	9.3%
1,2,3,6,7,8-HxCDD	0.15	0.18	0.17	0.14	0.15	0.15	0.16	0.14	0.16	0.013	8.5%
1,2,3,7,8,9-HxCDD	0.026	0.027	0.024	0.024	0.029	0.027	0.032	0.025	0.027	0.0025	9.2%
1,2,3,4,6,7,8-HpCDD	0.37	0.39	0.37	0.33	0.40	0.35	0.47	0.47	0.40	0.048	12.1%
OCDD	2.4	2.4	2.5	2.3	2.5	2.4	2.3	2.2	2.4	0.099	4.1%
2,3,7,8-TCDF	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
1,2,3,7,8-PeCDF	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
2,3,4,7,8-PeCDF	0.015	0.016	0.020	0.018	0.019	0.020	0.015	0.018	0.018	0.0018	10.4%
1,2,3,4,7,8-HxCDF	0.020	0.023	0.027	0.021	0.022	0.026	0.023	0.021	0.023	0.0023	10.3%
1,2,3,6,7,8-HxCDF	0.020	0.022	0.023	0.018	0.021	0.021	0.019	0.018	0.020	0.0016	7.8%
2,3,4,6,7,8-HxCDF	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
1,2,3,7,8,9-HxCDF	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
1,2,3,4,6,7,8-HpCDF	0.042	0.049	0.054	0.044	0.048	0.045	0.048	0.052	0.048	0.0039	8.1%
1,2,3,4,7,8,9-HpCDF	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
OCDF	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
344'5'-TCB(PCB81)	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
33'44'-TCB(PCB77)	0.097	0.091	0.10	0.083	0.098	0.094	0.100	0.083	0.093	0.0066	7.0%
33'44'5'-PenCB(PCB126)	0.062	0.063	0.073	0.059	0.060	0.066	0.070	0.057	0.064	0.0052	8.2%
33'44'55'-HxCB(PCB169)	0.050	0.058	0.062	0.058	0.061	0.055	0.057	0.054	0.057	0.0036	6.4%
Total PCDDs	3.0	3.1	3.1	2.9	3.1	3.0	3.0	2.9	3.0	0.086	2.9%
Total PCDFs	0.12	0.13	0.14	0.12	0.14	0.13	0.13	0.13	0.13	0.0074	5.7%
Total PCDDs/PCDFs	3.1	3.2	3.3	3.0	3.3	3.1	3.1	3.0	3.1	0.092	2.9%
Total Non-ortho-PCBs	0.22	0.23	0.25	0.21	0.23	0.23	0.24	0.21	0.23	0.013	5.5%
Total	3.4	3.4	3.5	3.2	3.5	3.4	3.4	3.2	3.4	0.10	3.0%
TEQ from PCDDs	0.045	0.050	0.048	0.046	0.047	0.045	0.050	0.047	0.047	0.0017	3.6%
TEQ from PCDFs	0.010	0.011	0.012	0.011	0.012	0.012	0.011	0.011	0.011	0.00072	6.4%
TEQ from PCDDs/PCDFs	0.056	0.061	0.060	0.057	0.059	0.057	0.060	0.058	0.059	0.0017	3.0%
TEQ from Non-ortho-PCBs	0.0077	0.0081	0.0091	0.0077	0.0078	0.0083	0.0088	0.0073	0.0081	0.00058	7.1%
Total-TEQ	0.063	0.069	0.069	0.065	0.067	0.065	0.069	0.065	0.067	0.0021	3.2%