



Artvin, Rize ve Trabzon'daki Doğal Kaynak Sularında Toplam Alfa, Toplam Beta Aktivite Değerlerinin Belirlenmesi ve Jeostatistiksel Olarak Modellenmesi

Yaşar KOBYA^{1*}, Cafer Mert YEŞİLKANAT², Bakiye ÇAKIR²

¹Artvin Çoruh Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi, Enerji Sistemleri Mühendisliği, 08000 Artvin, Türkiye

²Artvin Çoruh Üniversitesi, Fen Edebiyat Fakültesi, Fizik Bölümü, 08000 Artvin, Türkiye

Received: 27.10.2014; Accepted: 05.11.2014

Özet. Trabzon, Rize ve Artvin yaklaşık 18000km² alan üzerine kurulmuş ve yaklaşık 2 milyon insanın yaşadığı Türkiye'nin en kuzey doğusunda bulunan üç ildir. Bu üç ilde toplam 20 tane içme suyu kaynağından örnekler alındı ve bunların toplam alfa, toplam beta aktivite değerleri Berthold LB770 marka alfa, beta sayım cihazı kullanılarak belirlendi. Toplam alfa aktivite değerleri 1.7-114.2 Bq/L ve toplam beta aktivite değerleri ise 2.9-90.8 Bq/L aralıklarında ölçüldü. Bulunan bu değerler dünya sağlık örgütü (WHO)'nün limit değerleri ve yapılmış diğer benzer çalışmalarla karşılaştırıldı. Elde edilen veriler için klasik istatistik hesaplamalar yapıldı. Ayrıca jeostatistik analiz yöntemi kullanılarak eş-doza eğrileri oluşturuldu ve harita üzerinde gösterilerek bölge için bir risk haritası oluşturuldu.

Anahtar Kelimeler: Toplam alfa-toplam beta, jeostatistik analiz, doğal kaynak suyu, Artvin, Rize, Trabzon

Determination and Geostatistical Modelling of Gross Alpha, Gross Beta Activity Values in Natural Spring Water in Trabzon, Rize and Artvin Provinces

Abstract. Trabzon, Artvin and Rize where being the most northeast of the Turkey are three cities take place an area approximately 18000 km² large. Samples was collected from totally 20 potable water supplies into the cities and their gross alpha and gross beta activity values were measured with Berthold LB770 marked alpha, beta counting device. Activity values of the samples were evaluated value ranges 1.7- 114.2 Bq/L for gross alpha and 2.9-90.8 Bq/L for gross beta. The results were compared with world health organization (WHO) limits and other similar studies. Classical statistical calculations were performed for obtained datas. Also, iso-dose trajectories were created by using geo-statistical analyzes method and represented onto the map. So, a risk map was sketched.

Keywords: Gross Alpha, Gross Beta, Geostatistic, Natural spring water, Artvin, Rize, Trabzon

1. GİRİŞ

Su, canlıların yaşamsal faaliyetleri sürdürebilmeleri için en önemli elemanlardan biridir. Dünyanın %70'nin su ile kaplı olmasına rağmen, bu suların ancak %3'lük kısmı temiz ve içilebilir niteliktedir. İnsan hayatı için bu denli gerekli ve kaynakları oldukça sınırlı olan su, insan sağlığını tehdit edebilecek her türlü etkene karşı mümkün olduğunca temiz olmalıdır. Suyun temiz olması ifadesinden kasıt, yapısında insan sağlığı açısından zararlı olabilecek

* Corresponding author. Email address: ykoby@gmail.com

maddelerin bulunmamasıdır. Büyük bir çözücü özelliğe sahip suyun doğal ortamda saf halde bulunması imkansızdır.

Su için kirlenici olan ve dolayısıyla insan sağlığını tehdit edici özelliğe sahip unsurlardan biri de radyasyondur. Suyun radyasyonla kirlenmesi iki şekilde olmaktadır. İlki atmosferde ve toprakta bulunan doğal radyoaktif çekirdeklerden, diğeri ise nükleer reaktör kazaları, nükleer silah denemeleri ve tıbbi radyoaktif atıklardan kaynaklanmaktadır. Havada ve toprakta zamanla biriken bu radyoaktif maddeler, rüzgar ve yağmur gibi nedenlerle topraktan süzülme ve derinlerle bulunan su rezervuarlarında toplanmaktadır. Böylece insanların içme suyu kaynağı olarak kullandıkları bu sular radyoaktif olarak kirli hale gelmekte ve belirli oranlara ulaştıklarında insan sağlığını olumsuz olarak etkilemektedir.

Sularda radyoaktif kirlenme seviyelerini belirlemek için Türkiye’de ve dünyada yapılmış birçok çalışmaya rastlamak mümkündür. Duenas ve arkadaşları, İspanya’da şişe sularında doğal radyoaktifliği belirlemek amacıyla yaptıkları çalışmada toplanan numunelerin %26,2’sinde alfa aktivitesinin 100 mBq/L’den büyük, beta aktivitesinin ise 1000 mBq/L’den büyük çıkmadığını tespit etmişlerdir [1]. Malatya şehir merkezi ile ilçe merkezlerinin içme sularında toplam alfa ve beta aktivitesini bulmak için yapılan bir çalışmada toplam ortalama alfa ve beta aktivitesini sırasıyla 118.5±10.0 mBq/L ve 207.8±12.2 mBq/L olarak hesaplanmıştır [2]. Damla ve arkadaşları, doğu Karadeniz bölgesinde musluk sularında toplam alfa ve beta radyoaktifliğini tespit etmek amacıyla yaptıkları çalışmada toplam alfa aktivitesinin 0,2-15mBq/L arasında, toplam beta aktivitesinin ise 25,2-264,4mBq/L arasında değiştiğini tespit etmişlerdir [3]. Wisser ve arkadaşları, Almanya’da bazı içme sularında toplam alfa ve beta aktivitesini araştırmışlar ve sırasıyla toplam alfa, beta aktivitesini için üst sınırlarını 25-210mBq/L bulmuşlardır [4]. Kam ve Bozkurt, Kastamonu’daki içme sularında toplam alfa ve beta radyoaktifliğini belirlemek amacıyla yaptıkları çalışmada ortalama aktivite değerlerini alfa için 8,9mBq/L, beta için 271mBq/L olarak tayin etmişlerdir [5]. Llerena ve arkadaşları, İspanya’da çeşitli su tipi örneklerinde toplam alfa, toplam beta aktivitesini araştırmışlar ve toplam alfa aktivitesinin 4-42mBq/L, toplam beta aktivitesinin ise 37-90mBq/L arasında değiştiğini bulmuşlardır [6]. Shabana ve Kinsara, Suudi Arabistan’da yer altı sularında toplam alfa ve toplam beta aktivitesini araştırmışlar ve toplam alfa değişim aralığını 170-541mBq/L, toplam beta değişim aralığını ise 480-516mBq/L olarak bulmuşlardır [7].

Doğu Karadeniz bölgesindeki üç il (Artvin, Rize ve Trabzon) Türkiye’nin doğal kaynak suyu bakımından en zengin yerlerinden birisidir. Bu doğal kaynak suları sadece bu bölgede

Artvin, Rize ve Trabzon'daki Doğal Kaynak Sularında Toplam Alfa, Toplam Beta

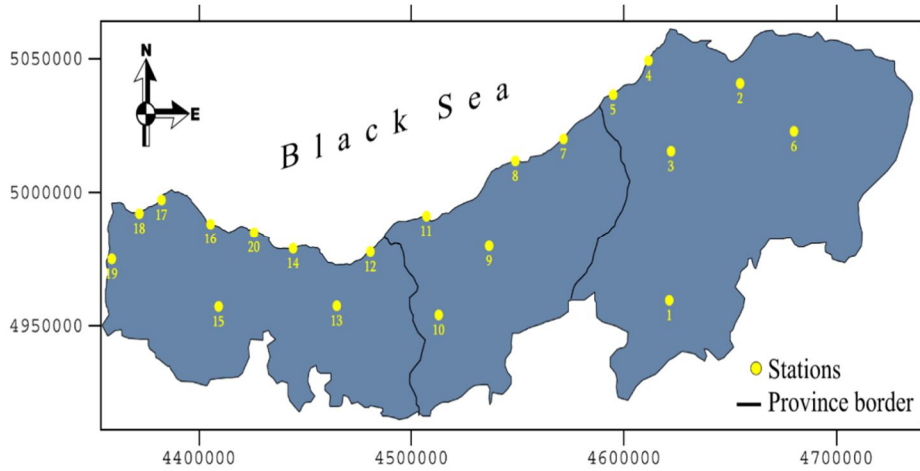
yaşayan yaklaşık 3 milyon insana değil, çeşitli firmalar tarafından şişelenerek Türkiye'nin dört bir tarafındaki insanlara içme suyu kaynağı sağlamaktadır.

Bu çalışmanın amacı; Artvin, Rize ve Trabzon illerindeki doğal kaynak sularında toplam alfa, toplam beta aktivitelerini belirlemek ve yapılacak jeostatistik analizlerle bölgenin ölçüm alınmamış yerlerindeki aktivite değerlerini tahmin ederek, bölgenin radyoaktif tahmini risk haritasını oluşturmaktır.

2. MATERYAL VE METOD

2.1 Çalışma Alanı ve Numunelerin Toplanması

Çalışma alanı ve numune alınan yerler Figür 1 ve Tablo 1'de gösterilmektedir. Toplam alfa, toplam beta aktivite ölçümleri için Artvin, Rize ve Trabzon illerinden toplam 20 istasyondan doğal kaynak suyu örneği alınmıştır.



Şekil 1. Çalışma alanı ve numune alınan yerler

2.2 Deney Sistemi

Numunelerin toplam alfa ve toplam beta radyoaktivite analizleri için, ÇNAEM Sağlık Fizik Bölümü laboratuvarında bulunan Berthold marka LB770 model 10 kanallı düşük seviyeli alfa-beta sayım cihazı kullanılmıştır. Bu cihaz, 10 numunenin alfa ve beta sayımlarını aynı anda

yapabilecek şekilde tasarlanmıştır. Bu sayım sistemi dedeksiyon ortamı ve elektronik devre olmak üzere başlıca iki kısımdan meydana gelir.

Dedeksiyon ortamı olarak en çok kullanılan gazlar argon, ksenon, izobütan, helyum ve metandır. Bir tüp, bu gazlardan biri veya ikisinin karışımı ile doldurulup içine iki elektrot konulur. Gaz içinde meydana gelen iyonlar zıt işaretli elektrotlarda toplanırlar. İyonların elektrotlarda toplanmasından meydana gelen elektrik akımı laboratuvar sayım cihazının elektronik devresinde dedekte edilir.

Alfa veya beta sayımında kullanılan bu gaz akışlı orantılı sayıcılar genellikle yarım küre şeklinde bir sayım odasına sahiptir. Ortalarında tungstenden yapılmış bir tel halka bulunur. Tel, anot görevi, oda duvarları da katot görevi görür. Akışkan gaz, oda içinden geçirilerek oda içinde pozitif iyonlar oluşturulur. Detektörün çalışma voltajı 1650 V olup çapı 5 cm'dir. Bu sayıcılarda kullanılan akışkan gaz %90 argon ve %10 metan karışımı içermektedir[8].

2.3 Numunelerin Toplam Alfa, Beta Analizine Hazırlanması

Su örnekleri alınmadan önce konacakları polietilen kaplar bikromik asitten geçirildikten sonra iyice çeşme suyuyla durulanıp çift destile sudan geçirilerek ağzı kapatılmıştır. Numune alınmadan önce çeşme açılarak birkaç dakika suyun akması sağlanmış ve daha sonra 5000 mL'lik polietilen kap üç defa kendi suyuyla çalkalandıktan sonra doldurulup nitrik asitle pH ≤ 2 'ye getirilerek ve ağzı sıkıca kapatıldıktan sonra etiketlenerek koruma altına alınmıştır. Bunun nedeni, su örnekleri içerisindeki elementlerin partiküler hale gelerek tortu oluşmasını ve örnek kabının çeperlerine yapışmasını önlemektir. Bu şekilde paketlenen numuneler ÇNAEM araştırma laboratuvarına getirildi. Burada her bir numune çeker ocakta 500 mL'lik beherlere konarak 60°C'de yaklaşık 100 mL kalana kadar buharlaştırıldı. Kalan kısım darası alınmış 20 cm³'lük paslanmaz çelik kaplara (planşet) azar azar taşmayacak şekilde aktarıldı. Su tamamen buharlaşınca planşetler bir desikatörde oda ısısına getirilip hassas terazide tartıldı ve tortu(rezidü) miktarı tayin edildi. Sayımlarda, özellikle alfa sayımlarında tortu miktarı çok önemlidir. Tortu miktarı 400 mg'ı geçmemelidir, aksi takdirde alfa parçacıklarında self-absorpsiyon oluşmakta bu da analiz sonuçlarında hatalara neden olmaktadır. Daha sonra çelik kaplar 105°C sıcaklığındaki bir etüv fırını içine konularak iyice kurutuldu. Ardından bütün numuneler toplam alfa ve toplam beta aktiflikleri tayin edilmek üzere detektöre konularak 500 dakika süreyle sayıldılar.

2.4 Jeostatistik Analiz

Jeostatistik genel anlamda yersel değişkenliğin uygulanabilen tekniği olarak bilinir [9]. Jeostatistik yöntemler, başlarda maden yatakları için uygulanmış daha sonraları konumsal ölçüm alınan tüm bilimlerde kullanılmıştır. Son dönemlerde meteoroloji, deniz bilimleri ve yer bilimlerinde geniş çapta uygulama alanları bulunmuştur. Mesafeye bağlı değişimin bir ifadesi olan yarıvariogramlar, jeostatistiğin temel unsurlarındandır.

Jeostatistiksel bir analizin ilk adımını, incelenen bölgedeki verilerin iyi bir şekilde organize edilmesi ve bilgi yönetimi oluşturur. Araziden elde edilen çeşitli kategorideki veriler uzaysal olarak birbirleri ile ilişkilendirilmeli ve yorumlanmalıdır. Daha sonra verilerin bölgedeki dağılımı için anizotropi incelemesi yapılır ve yöne bağlı variogramlar oluşturulur. Ardından bu variogramlar uygun parametrik fonksiyonlarla fit edilir ve model için gerekli parametreler bu fit fonksiyonu ile elde edilir.

Bu çalışmada jeostatistikte çok sık kullanılan ve literatürde en iyi yansız tahmin edici (BLUE: Best Linear Unbiased Estimator) [10] olarak geçen Kriging [11] tekniği kullanılmıştır. Kriging daha çok arazinin gerçek ölçüm değerlerini tahmin etmede kullanılan matematiksel bir yöntemdir [12].

3. BULGULAR VE TARTIŞMA

3.1 Toplam Alfa, Toplam Beta Aktivite Ölçüm Sonuçları

Tablo 1'de Artvin, Rize ve Trabzon illerinden toplanan 20 adet doğal kaynak suyu örneğinin toplam alfa, toplam beta aktivite ölçüm sonuçları görülmektedir. Tablo 1 incelendiğinde; bu üç il için genel ortalama toplam alfa, toplam beta değerleri sırasıyla 18.5mBq/L ve 26.1mBq/L'dir. Toplam alfa için illere göre ortalama değerler Artvin, Rize, Trabzon illeri için sırasıyla 27.5mBq/L, 19.7mBq/L ve 8.3mBq/L'dir. Toplam beta için illere göre ortalama değerler Artvin, Rize, Trabzon illeri için sırasıyla 27.2mBq/L, 26.6mBq/L ve 24.6mBq/L'dir. Hem toplam alfa hem de toplam beta ortalama aktiviteleri göz önüne alındığında en yüksek ortalamalar Artvin'de, sonra Rize'de en son da Trabzon'dadır. Çalışma alanının geneline bakıldığında; toplam alfa için en küçük değer Güneysu ve Of ilçelerinde, en yüksek değer ise Artvin Merkez ilçededir. Yine toplam beta için en küçük değer Of ilçesinde, en yüksek değer de Artvin Merkez ilçededir. Dünya Sağlık Örgütü tarafından içme suları için belirlenmiş limit değerler toplam alfa ve toplam beta aktiviteleri için sırasıyla 500mBq/L ve 1000mBq/L'dir [13]. Bu çalışmada toplanan doğal kaynak suyu örneklerinin hiçbiri belirlenen

KOBYA, YEŞİLKANAT, ÇAKIR

bu limit değerlerini aşmamaktadır. Ancak içilen bu suların insan vücudunda belirli oranlarda radyoaktif birikmeye yol açtığı ve bu birikimin ileriki yıllarda insan için potansiyel bir tehlike oluşturduğu da bir gerçektir.

Tablo 2’de çalışma sonucunda elde edilen verilerin benzer diğer çalışmalar ile karşılaştırılması görülmektedir. Bu çalışmanın toplam alfa aktivite sonuçları ile diğer çalışmaları karşılaştırdığımızda; İspanya’da yapılan çalışmanın sonuçlarının bu çalışma sonuçlarından küçük, Türkiye (Elazığ), Yunanistan ve İtalya’da yapılan çalışmaların sonuçlarının bu çalışma ile çok yakın olduğu görülmektedir.

Tablo 1. Toplam alfa, toplam beta aktivite ölçüm sonuçları

İller	İstasyonlar	Doğal Kaynak Suyu (mBq/L)	
		Toplam Alfa	Toplam Beta
ARTVİN	Yusufeli	39.6	25.3
	Borçka	2.0	5.8
	Murgul	1.9	4.0
	Hopa	5.6	17.2
	Arhavi	2.1	20.1
	Merkez	114.2	90.8
	İl Geneli	27.5	27.2
RİZE	Ardeşen	73.7	45.0
	Pazar	2.4	23.4
	Güneysu	1.7	7.5
	İkizdere	17.6	36.2
	Merkez	3.3	21.1
	İl Geneli	19.7	26.6
TRABZON	Of	1.7	2.9
	Köprübaşı	2.4	10.3
	Arsin	7.4	16.4
	Maçka	13.3	32.1
	Akçaabat	30.0	24.8
	Çarşıbaşı	10.6	38.8
	Vakfikebir	1.8	12.1
	Beşikdüzü	4.1	57.3
	Merkez	3.7	27.0
	İl Geneli	8.3	24.6
Genel Ortalama		18.5	26.1

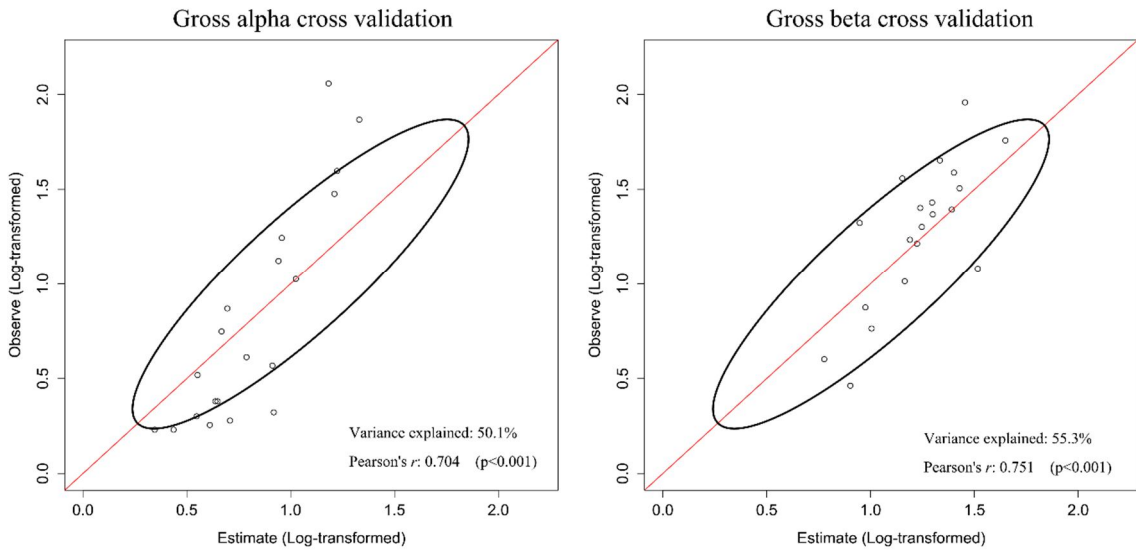
Bunun yanı sıra; diğer çalışmaların toplam alfa aktivite değerleri bu çalışmadan oldukça yüksektir. Toplam beta aktivite sonuçları ile diğer çalışmaları karşılaştırdığımızda; sadece İspanya’da yapılan çalışmanın sonuçlarının bu çalışma ile çok yakın olduğunu görmekteyiz. Diğer tüm çalışmaların toplam beta aktivite değerleri bu çalışmadan oldukça yüksektir.

3.2 Jeostatistik Analiz ve Ara Değer Tahmin Haritaları

Ordinary kriging tahmini, izotropik deneysel semivariogramın oluşturulması ve uygun modelin bu semivariograma fit edilmesi ile belirlenebilir. Toplam alfa ve toplam beta aktivite konsantrasyonlarının ara değer tahmin haritasını oluşturmak için kullanılan deneysel semivariogramı en iyi temsil eden modellerin toplam alfa için küresel model, toplam beta için exponansiyel model olduğu belirlenmiştir.

Tablo 2. Toplam alfa, toplam beta aktivite ölçüm sonuçlarının benzer çalışmalarla karşılaştırılması

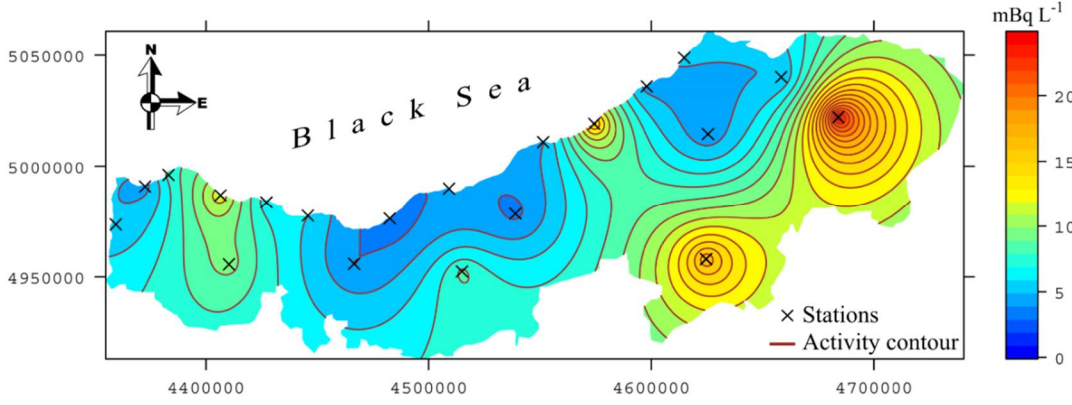
ÜLKE	Toplam Alfa (mBq/L)	Toplam Beta (mBq/L)	REFERANSLAR
Türkiye (Doğu Karadeniz)	1.7-114.2	2.9-90.8	Bu çalışma
Türkiye (Elazığ)	20-180	10-290	[2]
Türkiye (Eskişehir)	9-1640	6-890	[14]
Brezilya	<DL-428	120-860	[15]
A.B.D.	<DL-270	14,8-199,8	[16]
Meksika	<11-415	<26-695	[17]
Yunanistan	8-94	71-350	[18]
İtalya	<18.2-128.2	<41.6-258.9	[19]
İspanya	4-42	37-90	[6]
Suudi Arabistan	170-541	480-516	[7]



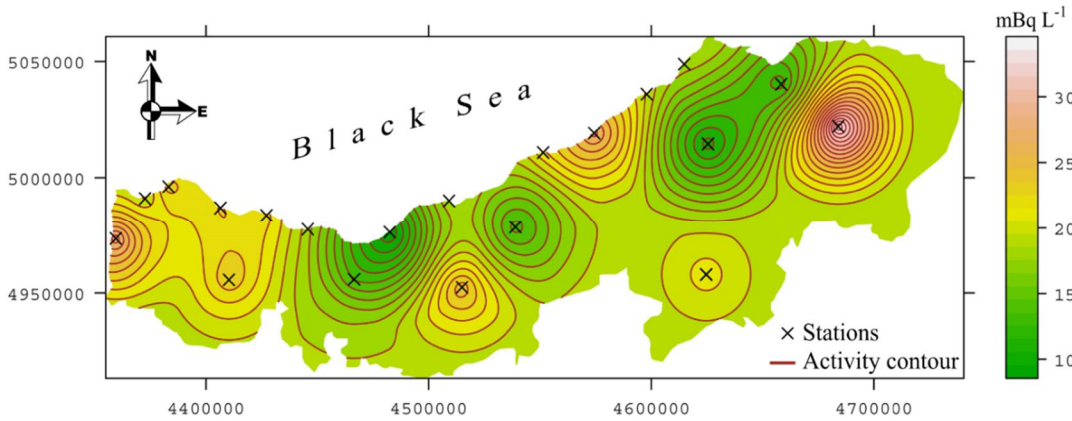
Şekil 2. Toplam alfa, toplam beta için çapraz doğrulama saçılma grafiği

KOBYA, YEŞİLKANAT, ÇAKIR

Belirlenen modeller doğrultusunda her iki aktivite konsantrasyonunun, ordinary kriging tahminlerinin her bir ölçüm noktası için çapraz doğrulama grafikleri figür 2’de verilmiştir. Her iki grafik için tahmin edilen ve gerçek değerleri arasında iyi bir lineer ilişki elde edilmiştir. Tahmin edilen noktaların çok büyük kısmı ihtimaliyet eğrisi elipsi içinde kalmıştır. Figür 3 ve figür 4’de hem toplam alfa hem de toplam beta için oluşturulan modellere göre çalışma alanının ordinary kriging ara değer tahmin haritası görülmektedir. Haritalarda özellikle Artvin yöresinde hem toplam alfa hem de toplam beta aktivite konsantrasyonlarının yüksek, diğer kesimlerin ise kısmen daha düşük olduğu görülmektedir.



Şekil 3. Toplam alfa için ordinary kriging ara değer tahmin haritası



Şekil 4. Toplam beta için ordinary kriging ara değer tahmin haritası

4. SONUÇLAR

Artvin, Rize ve Trabzon illerinde 20 adet doğal kaynak suyu örneği toplanarak, bu örneklerde toplam alfa, toplam beta aktivite ölçümleri yapıldı. Artvin, Rize ve Trabzon illerinde doğal kaynak sularındaki radyoaktivite seviyelerini genel olarak karakterize edebilecek sıklıkta toplanan örneklerin ölçüm sonuçları incelendiğinde; hiçbir ölçüm sonucunun WHO'nun doğal kaynak suları için belirlediği limit değerleri geçmediği görülmektedir. Çalışma alanı genelinin toplam alfa ortalaması 18.5mBq/L, toplam beta ortalaması ise 26.1mBq/L'dir. Bölgeden alınan ölçümler sonucunda; toplam alfa için en yüksek ve en küçük değerler sırasıyla 114.2mBq/L (Artvin-Merkez) ve 1.7mBq/L (Güneysu, Of)'dadır. Toplam beta için en yüksek ve en küçük değerler ise sırasıyla 90.8mBq/L (Artvin-Merkez) ve 2.9mBq/L (Of)'da olduğu görülmektedir. Ayrıca ordinary kriging yöntemi ile bölgeden numune alınmamış noktaların da hangi değerde olacağı tahmin edilmiş ve elde edilen bulguların yardımı ile toplam alfa, toplam beta aktivite değerleri için çalışma alanının radyolojik ara değer tahmin haritaları oluşturulmuştur.

Bu çalışmada elde edilen veriler, ülkedeki su kaynaklarının kalitesinin irdelendiği bir veri tabanının oluşturulması açısından oldukça önemlidir. Yapılan bu çalışma ülke geneline yayılarak periyodik hale getirilmeli ve sulardaki radyoaktivite değişimleri gözlem altında tutulmalıdır.

KAYNAKLAR

1. Duenas C, Fernandez MC, Gonzalez JA, et al. (1983) Ra-226 and Ra-224 in Waters in Spain. *Toxicological and Environmental Chemistry* 39:71–79.
2. Dogru M, Canbazoglu C (2002) Natural gross radioactivity in various surface and tap waters in Elazığ, Turkey. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 254:379–382. doi: 10.1023/A:1021652722743
3. Cevik U, Damla N, Karahan G, et al. (2006) Natural radioactivity in tap waters of Eastern Black Sea region of Turkey. *Radiation protection dosimetry* 118:88–92. doi: 10.1093/rpd/nci325
4. Wisser S, Frenzel E, Dittmer M (2006) Innovative procedure for the determination of gross-alpha/gross-beta activities in drinking water. *Applied radiation and isotopes : including data, instrumentation and methods for use in agriculture, industry and medicine* 64:368–72. doi: 10.1016/j.apradiso.2005.08.017

5. Bozkurt A, Yorulmaz N, Kam E (2007) Environmental radioactivity measurements in Harran plain of Sanliurfa, Turkey. *Radiation Measurement* 42:1387–1391.
6. Llerena JJ, Cortina D, Durán I, Sorribas R (2010) (222)Rn concentration in public secondary schools in Galicia (Spain). *Journal of environmental radioactivity* 101:931–6. doi: 10.1016/j.jenvrad.2010.06.009
7. Shabana EI, Kinsara AA (2014) Radioactivity in the groundwater of a high background radiation area. *Journal of environmental radioactivity* 137:181–9. doi: 10.1016/j.jenvrad.2014.07.013
8. Kobya Y, Damla N, Cevik U, et al. (2010) Radiological characterization of natural spring waters in the Eastern Black Sea Region, Turkey. *Environ Forensics* 11:187–192.
9. Clark I (1979) *Practical Geostatistics*, First Edit. 119.
10. Oliver MA, Webster R (2014) A tutorial guide to geostatistics: Computing and modelling variograms and kriging. *CATENA* 113:56–69. doi: 10.1016/j.catena.2013.09.006
11. Krige DG (1966) Two-dimensional weighted moving average trend surfaces for ore-evaluation. *J South Afr Inst Min Metall* 66:13–38.
12. Matheron G (1970) *Random Structures and Mathematical Geology*. Review of The International Statistical Institute 38:
13. WHO (2006) *Guidelines for drinking-water quality*, third edit. 595.
14. Orgün Y, Altinsoy N, Sahin SY, et al. (2007) Natural and anthropogenic radionuclides in rocks and beach sands from Ezine region (Canakkale), Western Anatolia, Turkey. *Applied radiation and isotopes : including data, instrumentation and methods for use in agriculture, industry and medicine* 65:739–47. doi: 10.1016/j.apradiso.2006.06.011
15. Bonotto DM, Bueno TO, Tessari BW, Silva A (2009) The natural radioactivity in water by gross alpha and beta measurements. *Radiation Measurements* 44:92–101. doi: 10.1016/j.radmeas.2008.10.015
16. Blevins RA, Tulinsky A (1985) Comparison of the independent solvent structures of dimeric alpha-chymotrypsin with themselves and with gamma-chymotrypsin. *The Journal of biological chemistry* 260:8865–72.
17. Dávila Rangel JI, López del Rio H, Mireles García F, et al. (2002) Radioactivity in bottled waters sold in Mexico. *Applied radiation and isotopes : including data, instrumentation and methods for use in agriculture, industry and medicine* 56:931–6.
18. Karamanis D, Stamoulis K, Ioannides KG (2007) Natural radionuclides and heavy metals in bottled water in Greece. *Desalination* 213:90–97. doi: 10.1016/j.desal.2006.03.604
19. Desideri D, Meli MA, Roselli C (2010) Natural and artificial radioactivity determination of some medicinal plants. *Journal of Environmental Radioactivity* 101:751–756. doi: 10.1016/j.jenvrad.2010.04.018