

專 論

以鉛同位素組成特徵探討臺北關渡平原
農地污染來源

**Identifying Pollution Source of Paddy Soils by Using
Lead Isotope Ratio Measurements at Guandu, Taipei**

國立臺灣大學
生物環境系統工程學系
教授

張 尊 國*

Tsun-Kuo Chang

國立臺灣大學
地質科學系
副教授

沈 川 洲

Chuan-Chou Shen

國立臺灣大學
生物環境系統工程學
研究所碩士

陳 聖 堃

Sheng-Kuen Chen

國立臺灣大學
地質科學
研究所碩士

羅 允 杰

Yun-Chieh Lo

國立臺灣大學
生態工程研究中心
博士後研究員

鄭 百 佑

Bai-You Cheng

東南科技大學
環境管理系
副教授

涂 貴 新

Guey-Shin Shyu

國立臺灣大學
生物環境系統工程學
研究所博士生

林 聖 淇

Sheng-Chi Lin

摘 要

臺北關渡平原農地砷及鉛含量分別介於 8-458 mg kg⁻¹ 及 23-600 mg kg⁻¹，在現有農耕地中此含量已屬於異常之高。為確定砷及鉛來源及影響範圍，本研究以多頻感應耦合電漿質譜儀(MC-ICP-MS)檢測環境介質灌溉水源與土壤的鉛同位素比值²⁰⁶Pb/²⁰⁷Pb、²⁰⁸Pb/²⁰⁷Pb，經空間群集分析，並藉由地理資訊系統展示，比對歷史的圖層資料以鑑定砷及鉛的來源。結果顯示，因天然地球化學特性，地熱谷溫泉砷及鉛含量偏高，而關渡平原農地東南側熱區之土壤則是過去引用地熱谷水源灌溉長期累積，導致今日農地砷及鉛濃度異常。

關鍵詞：鉛同位素，同位素指紋辨識，來源鑑定，多頻感應耦合電漿質譜儀，關渡平原。

*通訊作者，國立台灣大學生物環境系統工程學系教授，10617 台北市大安區羅斯福路 4 段 1 號，tknchang@ntu.edu.tw

ABSTRACT

In Guandu Plain, the paddy soils hold anomalously high level of 8-458 mg kg⁻¹ for arsenic and 23-600 mg kg⁻¹ for lead. We propose to use lead isotope ratios, ²⁰⁶Pb/²⁰⁷Pb and ²⁰⁸Pb/²⁰⁷Pb, determined by multi-collector inductively coupled plasma mass spectroscopy (MC-ICP-MS), to distinguish pollution sources. Using geographical information system (GIS) technology, a significant spatial cluster relationship is observed for sample lead isotope ratios. Results show that the migrations of As and Pb are primarily influenced by geochemical processes. The hot-spot areas for As and Pb located in the southeast parts of Guandu Plain arose from the long-term irrigated the water mixed with hot spring from the Thermal Valley.

Keywords: Pb isotopes, Isotopic fingerprinting, Source identification, MC-ICP-MS, Guandu Plain.

一、前言

農地土壤在環境中具有極為重要的作用，除了提供生物成長場所外，亦係作物生長時所需營養源之關鍵媒介，故須確保其永續性(Elbering *et al.*, 2002)。由於經濟發展帶動工廠之增設，造成農地土壤重金屬污染等事件層出不窮。因此，除了調查農地土壤之重金屬含量和分佈之外，鑑定污染來源並且有效控制污染範圍則為重要的環境議題(Spiro *et al.*, 2004)。

地理資訊系統可視覺化展示地理資料統計成果，並能協助推估重金屬污染範圍，透過不同圖層之套疊比對，可研判污染熱區之影響因子(Facchonelli *et al.*, 2000; Gritzner *et al.*, 2001; Zhang, 2006; Lin, 2010)。臺北市環保局於 93-95 年間針對關渡農地進行重金屬含量調查，結果顯示，砷濃度介於 4-513 mg kg⁻¹ 間，約 123 公頃農地含砷量超過現行我國土壤管制標準值 60 mg kg⁻¹，且其空間分佈成聚塊現象(徐及林, 2004)。關渡農地北邊 2 公里處的地熱谷溫泉水之砷及鉛濃度分別為 4.82 mg L⁻¹ 和 0.35 mg L⁻¹ (王, 2005)；其周邊土壤的砷及鉛濃度介於 666-2113 mg kg⁻¹ 和 1935-7005 mg kg⁻¹ (陳, 2007)。由於此區域附近無明顯工業排放來源，故判斷關渡農地中異常的砷及鉛含量可能為區域性天然地球化學作用所造成(張, 2007)。

鉛同位素組成是鑑定重金屬係人為污染或天然背景之常用示蹤劑(Farmer and Eades, 1996; Bacon and Dinev, 2005; Komárek, 2008; Cheng and Hu, 2010)。鉛有四種天然穩定同位素：²⁰⁴Pb、²⁰⁶Pb、²⁰⁷Pb 及 ²⁰⁸Pb，所佔比例分別為 1.4%、24.1%、22.1% 及 52.4%。除 ²⁰⁴Pb 天然賦存於地殼外，²⁰⁶Pb、²⁰⁷Pb 和 ²⁰⁸Pb 分別衰變自 ²³⁸U、²³⁵U 與 ²³²Th (Doe and Stacey, 1974)。含鉛礦物或岩石於形成之初，將不再接受來自鈾和釷等母系核種的衰變產物，物質之鉛同位素組成將維持定值，因此形成特徵(鄭和陳, 2000)。此特徵可作為鑑識鉛來源之依據，應用層面包括河水(Kurkjian, 2004)、大氣落塵(Bollhöfer and Rosman, 2000, 2001; Flament *et al.*, 2002; Hsu *et al.*, 2005)、鉛礦殘渣物(Marguí, 2006)、底泥(Négrell *et al.*, 2004; Millot *et al.*, 2004)、植物(Marguí, 2007; Bi, *et al.*, 2009)與土壤(Chow, 1970; Beyer *et al.*, 1985; Ansari *et al.*, 1999; Lai and Chen, 2009; Siklósy, Z., *et al.*, 2009; Weiss *et al.*, 2004)。因此，本文檢測關渡平原農地土壤及灌溉水源之鉛同位素組成，經群集分析，並藉由地理資訊系統展示，比對空間圖層及相關之歷史資料，釐清關渡農地砷及鉛的來源。

二、材料和方法

2.1 研究場址

關渡平原位於臺北市北投區西南側，佔地面

積約 842 公頃。區域屬於亞熱帶氣候型態，年均溫和年平均降雨量分別為 22°C 和 2363 mm，農作物以水稻栽種為主。近 50 年來為求經濟發展，部分關渡平原之土地利用已轉而以住宅及工商業發展為導向，而增設的工廠及聯絡道路所排出的廢污水及廢氣等，具有增高農地污染風險之潛勢(施，2007)。

關渡農地隸屬於臺北盆地，受到 280 萬年前的大屯火山群與 60 萬年前觀音火山爆發影響，以及斷層和河流襲奪作用形成臺北盆地原貌，而 1 萬年前海水上漲與 1694 年發生的大地震，曾使臺北盆地先後浸漫於水中，形成湖泊(謝，2000)，本研究區域關渡農地位於海水入排口處，受湖泊事件影響甚大。此外，依據(台北市七星農田水利會會誌，1987)記載，北投平原之磺水圳道開鑿使用可追溯至道光 11 年(即西元 1831 年)，故關渡農地引用地熱谷水源作為灌溉之用迄今已將近 180 年。

迄今，大屯火山群之後火山活動仍十分活躍，相較於其他溪流，地熱谷水源中之放射性核種 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 和 $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ 活度比皆大於 1，呈不均衡狀態，核種衰變現象仍持續進行(Chu and Wang, 1997)。地熱谷水源流經的河床有放射性礦物北投石(Okamoto, 1909)及砷鉛鐵礬礦生成(張，2007)，係一處全球罕見的獨特地質現象。

2.2 樣品採集

根據張(2007)已完成關渡農地之砷及鉛濃度分布調查結果，進行本研究採樣點位佈設。為詳實探討研究區域之重金屬來源，針對境內三個不同的灌溉水源小組之農地土壤進行鉛同位素分析，包括北投小組、嘎嘮別小組與一德小組。由張(2007)調查結果得知，相較於其他兩個灌溉小組，北投小組之農地土壤是為關渡平原砷及鉛濃度異常的熱區且重金屬濃度呈現擴散遞減狀，故本研究於該區之重金屬濃度歧異處佈設 15 處採樣點位，加上嘎嘮別小組與一德小組各別 2 處採樣點，共計 19 處土壤樣本。此外，本研究針對灌溉小組之引灌水源分析其鉛同位素組成，包括地熱谷、硫磺谷和水磨坑溪共計 3 處，採樣點分布如圖 1。

為避免運送過程受到污染，經不鏽鋼採樣器蒐集表層土壤(採樣深度為地表至距地表下 15 cm)後，密封於聚乙烯袋。土壤樣品先以烘箱溫度 30°C 烘乾後，以孔徑 2 mm 篩網進行挑除樹根、石塊等非屬土壤基質之篩分析。再者，以孔徑 50 μm 篩網篩選細粒徑樣本顆粒後保存至聚乙烯瓶中。用 1 L 鐵氟龍瓶收集灌溉水源樣本，外層以聚乙烯膜包覆，阻絕落塵影響。水樣經 0.45 μm 濾紙過濾後，以熱板溫度 100°C 將溶液烤乾備用。

2.3 鉛同位素組成分析

稱取 0.01 g 前處理後之土壤及水樣烤乾物進行鉛同位素組成分析。化學方法與分析流程採用羅(2008)所發表之程序，實驗過程所使用的鐵氟龍容器皆以 10% 硝酸隔夜浸置，並於使用前以超純水潤洗。採用分析級試劑，以熱板加酸消化樣品($\text{HF-HNO}_3\text{-HCl}$, 170°C)直至樣本殘餘態溶解後，溶置於 2 ml 1 N HNO_3 中。為降低基質干擾以提高物質含鉛量檢出率，將螯合劑鋸樹脂充填鐵氟龍分離柱中，作為鉛的純化步驟，分離步驟的回收率介於 95-100% 之間。先用 1 N 硝酸和 2 N 鹽酸沖洗非鉛基質後，再以 8 N 鹽酸洗提吸附於鋸樹脂中的鉛，將純化步驟完成之含鉛溶液浸置於 1 N HNO_3 中待鉛同位素分析試驗。

本研究以高解析多頻感應耦合電漿質譜儀(Multi-Collector Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer, MC-ICP-MS, Thermo-Fisher, Neptune)檢測樣本的鉛同位素組成。實驗流程的化學空白鉛污染低於 20 pg。針對奈克級(2-10 ng) NIST SRM 981 標準品進行為期一年(2007/3-2008/4)的儀器測量得知， $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 與 $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 長期再現性為 $\pm 200 \times 10^{-6}$ (2σ)，與國際各知名實驗室測量結果一致(Thirlwall, 2002; Baker *et al.*, 2004; Weiss *et al.*, 2004)。

2.4 統計分析

使用 Excel 和 SPSS® 資料庫進行實驗數據分析。在 SPSS® 群集分析模組中，以華德法判定樣本群集性，選擇歐氏距離作為相似度評量指標，當距離越小，表示相關性越顯著。

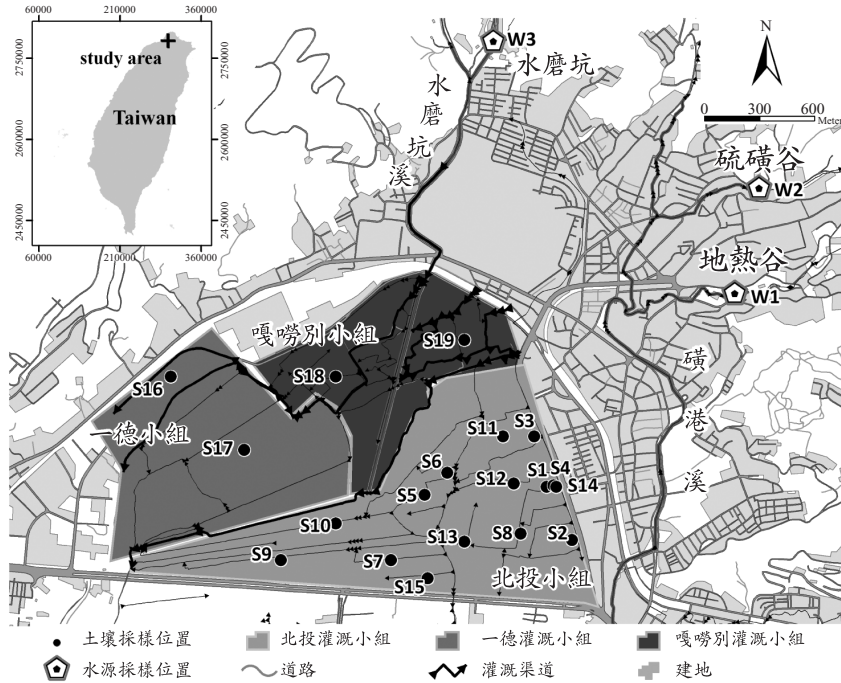


圖 1 關渡平原土壤(S1-S19)及灌溉水源(W1-W3)採樣點位分佈

三、結果與討論

3.1 鉛同位素組成分析

為驗證關渡農地高濃度的砷及鉛係來自地熱谷水源，本研究針對農地土壤及可能造成污染的灌溉水源進行鉛同位素特徵比對，關渡平原土壤和水源樣本的穩定性鉛同位素組成($^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 及 $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$)如表 1。

依不同的引灌水源，探討受灌農地之鉛同位素比值。北投小組農地之 $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 比值介於 1.1744-1.1839，而 $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 比值介於 2.4659-2.4810。嘎嘮別小組農地 $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 比值為 1.1735-1.1746，而 $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 介於 2.4670-2.4715。一德小組農地 $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 介於 1.1748-1.1758，而 $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 介於 2.4730-2.4738。數據顯示，不同的灌溉小組農地，卻表現部分極為類似的鉛同位素比值。

農地土壤及其灌溉水源之鉛同位素比值 $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 及 $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 存在之線性關係如圖 2，說明本研究區域主要係由兩種不同的鉛源混合

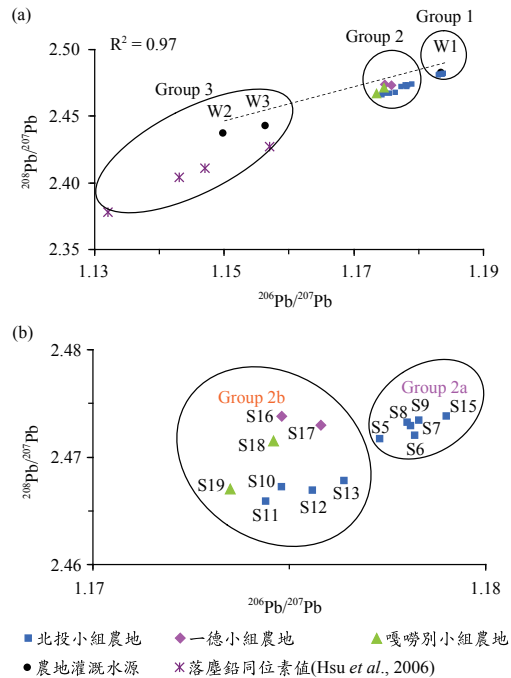


圖 2 關渡平原樣本鉛同位素組成($^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 和 $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$)其中(a)依樣本同位素組成劃分主要鉛源(b)將 Group 2 樣本進行局部放大

表 1 關渡平原樣本鉛及砷濃度和鉛同位素組成

		樣本編號	鉛 ^c (mg kg ⁻¹)	砷 ^c (mg kg ⁻¹)	²⁰⁶ Pb/ ²⁰⁷ Pb ^f	²⁰⁸ Pb/ ²⁰⁷ Pb ^f
大屯火山岩石 ^a					1.185	2.480
大氣落塵 ^b					1.12-1.17	2.35-2.45
關渡 農地 土壤	北投小組	S14	600	458	1.1839 ± 0.0002	2.4818 ± 0.0004
		S4	574	403	1.1837 ± 0.0002	2.4815 ± 0.0011
		S1	521	415	1.1836 ± 0.0003	2.4813 ± 0.0005
		S2	266	313	1.1831 ± 0.0002	2.4806 ± 0.0019
		S12	232	385	1.1756 ± 0.0002	2.4669 ± 0.0022
		S8	191	189	1.1780 ± 0.0003	2.4732 ± 0.0004
		S3	183	126	1.1832 ± 0.0003	2.4811 ± 0.0006
		S13	134	204	1.1764 ± 0.0003	2.4678 ± 0.0006
		S15	117	50	1.1790 ± 0.0003	2.4738 ± 0.0006
		S6	68	97	1.1782 ± 0.0003	2.4720 ± 0.0005
		S7	67	59	1.1781 ± 0.0003	2.4729 ± 0.0006
		S5	60	67	1.1773 ± 0.0003	2.4717 ± 0.0006
	S10	60	53	1.1748 ± 0.0003	2.4672 ± 0.0006	
	S9	59	49	1.1783 ± 0.0004	2.4734 ± 0.0008	
	S11	39	134	1.1744 ± 0.0002	2.4659 ± 0.0010	
一德小組	S17	45	24	1.1758 ± 0.0002	2.4730 ± 0.0024	
	S16	23	11	1.1748 ± 0.0002	2.4738 ± 0.0012	
嘎嘮別小組	S19	32	14	1.1735 ± 0.0003	2.4670 ± 0.0006	
	S18	29	8	1.1746 ± 0.0003	2.4715 ± 0.0021	
灌溉 水樣	地熱谷	W1	0.358 ^d	4.827 ^d	1.1835 ± 0.0001	2.4825 ± 0.0014
	硫磺谷	W2	0.022 ^d	0.012 ^d	1.1498 ± 0.0007	2.4369 ± 0.0015
	水磨坑溪	W3	<0.0034 ^e		1.1563 ± 0.0005	2.4425 ± 0.0011

^a Wang *et al.*, 2004 ; ^b Hsu *et al.*, 2006 ; ^c 張, 2007 ; ^d 王, 2005 (單位: mg L⁻¹)

^e 臺北市環境保護局技術室, 2004 (單位: mg L⁻¹) ; ^f 單一實驗誤差以兩個標準差表示 (2σ)

而成(Bacon *et al.*, 1996; Monna, 1997; Emmanuel and Erel, 2002), 如前言所提及因物質形成年代之差異, 鉛同位素間的相對豐度將表現不同的同位素比值特徵。圖 2 中土壤樣品明顯可分為兩群, 而調查的三處水樣則呈分散狀。其中值得注意的是, 地熱谷的水樣與部分農地土壤的樣品表現高度相關性。

表 1 顯示, 地熱谷水源與大屯火山群母岩(Wang *et al.*, 2004)的鉛同位素比值極為相近, 而部分北投小組農地亦表現與上述兩者相同的鉛同位素比值, 即圖 2a 中 Group 1, 其農地含鉛量(>180 mg kg⁻¹)及含砷量(>120 mg kg⁻¹)皆較一般農地砷及鉛含量明顯偏高。此一趨勢說明這三個地方存有顯著相同的地理特徵, 即意謂有一砷及

鉛源正在或曾於這三處發生強烈的地表影響作用。相較於與地熱谷水源表現同源特徵的 Group 1, 其餘的農地土壤樣本則另自形成 Group 2。其樣本位置涵蓋研究區域內三個灌溉小組, 係關渡平原農地主要的鉛同位素比值特徵。圖 2b 局部放大則顯示, 分屬三個灌溉小組的農地土壤具有個別且獨特的鉛同位素特徵, 並非呈混合難分之散佈。值得一提的是, 同樣是屬於 Group 2 中的北投小組農地樣本, 卻表現兩種不同鉛同位素特徵, 如圖 2b 中 Group 2a (²⁰⁶Pb/²⁰⁷Pb 介於 1.1773-1.1790)和 Group 2b (²⁰⁶Pb/²⁰⁷Pb 介於 1.1735-1.1764)。相較於 Group 2b, Group 2a 受地熱谷水源的影響更為強烈。

由樣品鉛同位素組成所透露的地理特徵訊

Dendrogram using Ward Method

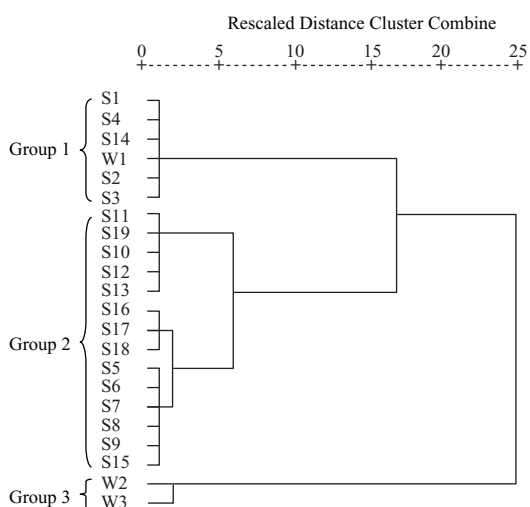


圖 3 群集分析-華德法對農地土壤(S1-S19)和灌溉水源(W1-W3)進行樣本 $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 和 $^{208}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 之樹狀圖結果(n = 22)

息，可得知共有三道不同的鉛源影響關渡農地土壤的重金屬含量，分別係 Group 1：與大屯火山群及地熱谷水源表現相同來源。Group 2：關渡平原農地最大宗組成，由於受到不同引灌水源影響，群別本身亦顯露出不同灌溉小組之特徵差異。Group 3：其他來源，該群集為灌溉水源樣本，其鉛同位素組成與當地落塵(Hsu *et al.*, 2006)相近。為評估此三道鉛源影響範圍並定義其驅動因子，本文以空間群集分析法進行下一階段之探討。

3.2 空間群集分析

為客觀且有效地對樣本進行分類，本研究採用群集分析法(Norusis, 1993)解析樣本鉛同位素比值之相關性，將群集分析結果以樹狀圖展示如圖 3。由灌溉水樣組成 Group 3 明顯與土壤樣本所組成的 Group 1、Group 2 有所不同，此係因不同樣品本身介質組成之差異所致。然而在 Group 1 中，地熱谷水源樣本 W1 卻和土壤有顯著的相關性。Group 2 亦反映該群集中有兩種子群所構成。

以地理資訊系統展示樣品鉛同位素組成成分群結果詳圖 4。以地理資訊系統繪製 1904 年臺灣

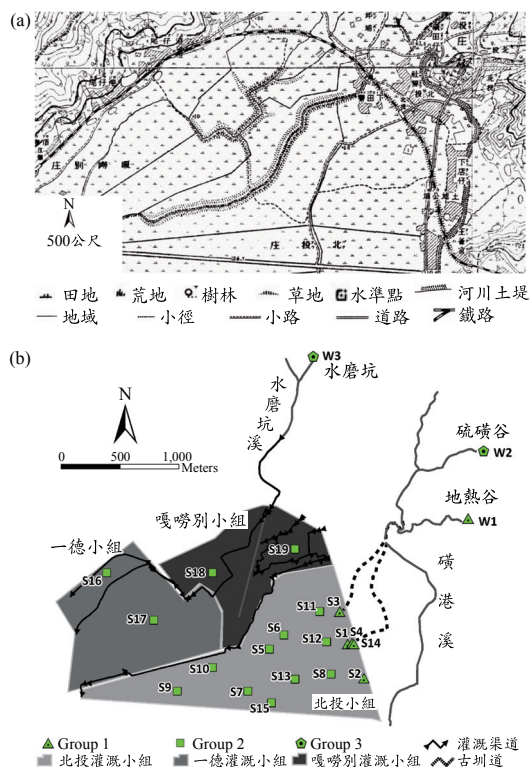


圖 4 關渡平原重金屬來源之圖層套疊判識。其中 (a)記載於台灣堡圖中關渡平原於 1904 年舊有灌溉設施及地貌分佈圖(b)關渡平原中樣本鉛同位素組成之空間群集分佈圖

堡圖之舊有引灌水圳資料至現今關渡平原地表特徵則能清楚顯示，地熱谷水源曾經由古圳道灌溉系統進入到關渡農地，因而北投灌溉小組東南側農地土壤與地熱谷水源表現相同的地理特徵，此亦解釋關渡農地異常的砷及鉛含量主要係從地熱谷而來。

大部分的農地土壤則屬同一群集，分佈在整個關渡平原中。該群集的砷濃度平均值達 96 mg kg^{-1} ，遠高於全球平均值 4.7 mg kg^{-1} (Kabata-Pendias, 2007)及臺灣農地土壤平均值 8.9 mg kg^{-1} (陳與李, 1995)。而鉛濃度平均值為 95 mg kg^{-1} ，亦高於全球土壤鉛濃度 25 mg kg^{-1} (Kabata-Pendias, 2007)及臺灣農地土壤平均鉛濃度 39.5 mg kg^{-1} (陳與李, 1995)。現有的地籍資料顯示，農地周遭雖有工廠、建築物林立，但卻無明確含鉛及砷之污染物排入農地之情勢。由當地

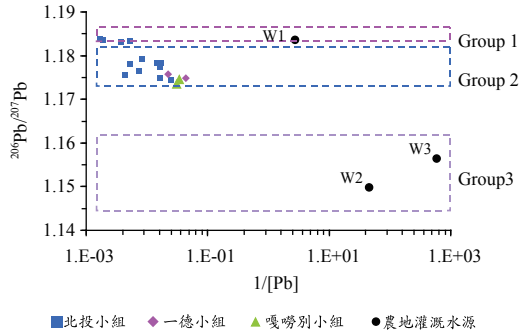


圖 5 鉛同位素比值($^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$)與鉛濃度倒數關係

歷史資料得知，於 1694 年因地震產生的地陷所形成的康熙臺北湖(謝，2000)，其湖水將高濃度砷及鉛之地熱谷溫泉承受，由地熱谷溫泉水經溪流灌注於整個關渡平原之湖泊中，形成今日農地砷及鉛含量皆呈偏高之情況。待康熙臺北湖積水退去後，因農業活動才引用不同的灌溉水源，故 Group 2 於空間群集分析時保有地熱谷及不同灌溉水源組成之鉛同位素特徵。

前已清楚描述並定義造成樣本群集背後驅動力，Group 1：地熱谷水源經由灌溉渠道進入到關渡平原中，致使受灌農地呈現極高的砷及鉛含量、Group 2：隨地震所形成的康熙臺北湖承受地熱谷水源之匯入，造成關渡平原土壤砷及鉛平均含量偏高、Group 3：含鉛量極低的水源與地區落塵樣本表現較類似的特徵，但其並非是造成農地含鉛異常之主因。

3.3 鉛同位素比值與鉛濃度關係

農地土壤中的重金屬來源可能很多以致於難以辨別其來源(Kabata-Pendias, 2007)，相較於以土壤重金屬含量多寡判定污染源的傳統方式，應用穩定性鉛同位素之鑑識技術，更可提高鑑定重金屬來源之準確性(Beyer *et al.*, 1985; Bacon, 2005)。

圖 5 樣品鉛同位素比值($^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$)與鉛濃度倒數關係顯示(Marguí *et al.*, 2007)，以鉛同位素比值作為衡量物質來源屬性時，低濃度的地熱谷水源含鉛量 0.35 mg kg^{-1} 與高濃度的農地土壤含鉛量 600 mg kg^{-1} 被判定為相同來源。由時間和空

間變異之討論結果得知，這兩個地方反映相同的鉛同位素特徵無疑係為相同來源，十分吻合圖 5 樣品分佈的趨勢。由此顯見，無關鉛含量差異，鉛同位素指紋技術可正確地判定鉛來源，再結合地理資訊系統的圖層資料套疊，更能清楚解釋造成重金屬來源的驅動力，顯見本文應用鉛同位素作為追蹤砷及鉛來源之價值所在。

四、結 論

由樣本鉛同位素比值特徵之群集分析結果結合地理資訊系統展示，並經由歷史時間與空間記錄資料的探討，足以證實關渡平原農地高濃度的砷及鉛係來自地熱谷水源。在國內土壤污染來源鑑別領域中，本研究是國內首次將鉛同位素組成特徵應用於土壤中重金屬來源判別之案例，希藉此作為提供環境法醫探討污染來源的依據方法之一，作為未來其他案例鑑識之參考。

參考文獻

1. 台北市七星農田水利會會誌，1987，台北市七星農田水利會出版。
2. 王懿德，2005，臺灣地區溫泉特性與其有害重金屬及陰離子濃度研究，國立陽明大學環境衛生研究所碩士論文。
3. 施孟聰，2007，關渡平原土壤砷、鉛污染之空間分佈及成因探討，國立臺灣大學生物環境系統工程學研究所碩士論文。
4. 徐貴新、林景行，2004，臺北市農地土壤重金屬控制場址污染改善工作監督與驗證計畫，臺北市環境保護局委託計畫報告。
5. 張尊國，2007，臺北市農地土壤重金屬含量調查及查證計畫，臺北市政府環境保護局。
6. 陳尊賢、李達源，1995，臺灣代表性農業土壤的重金屬含量，中國環境工程學刊，第 5 卷，第 3 期，205-211 頁。
7. 陳威智，2007，北投溫泉地區磺港溪底泥中重金屬砷鉛濃度分布之探討，國立臺灣大學生物環境系統工程學研究所碩士論文。
8. 臺北市政府環境保護局技術室，2004，河川水質檢驗統計概況。

9. 臺灣堡圖，1992，一九〇四(明治三十七年)調製，遠流出版公司。
10. 謝英宗，2000，康熙臺北湖古地理環境之探討，臺灣大學地理學系地理學報，第27卷，85-95頁。
11. 鄭永飛、陳江峰，2000，穩定同位素地球化學，科學出版社。
12. 羅允杰，2008，多頻道感應耦合電漿質譜儀之高精度奈克及鉛同位素分析及關渡平原案例探討，國立臺灣大學地質科學研究所碩士論文。
13. Ansari, A.A., Singh, I.B., Tobschall, H.J., 1999. Status of anthropogenically induced metal pollution in the Kanpur-Unna industrial region of the Ganga Plain, India. *Environmental Geology* 38, 25-33.
14. Bacon, J.R., Jones, K.C., McGrath, S.P., Johnston, A.E., 1996. Isotopic character of lead deposited from the atmosphere at a Grassland site in the United Kingdom since 1860. *Environmental Science and Technology* 30, 2511-2518.
15. Bacon, J.R., Dinev, N.S., 2005. Isotopic characterization of lead in contaminated soils from the vicinity of a non-ferrous metal smelter near Plovdiv, Bulgaria. *Environmental Pollution* 134, 247-255.
16. Baker, J., Peate, D., Waight, T., Meyzen, C., 2004. Pb isotopic analysis of standards and samples using a ^{207}Pb - ^{204}Pb spike and thallium to correct for mass bias with a double-focusing MC-ICP-MS. *Chemical Geology* 211, 275-03.
17. Beyer, W.N., Pattee, O.H., Sileo, L., Hoffman, D.J., Mulhern, B.M., 1985. Metal contamination in wildlife living near two zinc smelters. *Environmental Pollution (Ser A)* 38, 63-86.
18. Bi, X., Feng, X., Yang, Y., Li, X., Shin, G.P.Y., Li, F., Qiu, G., Li, G., Liu, T., Fu, Z., 2009. Allocation and source attribution of lead and cadmium in maize (*Zea mays* L.) impacted by smelting emissions. *Environmental Pollution* 117, 834-839.
19. Bollhöfer, A., Rosman, K.J.R., 2000. Isotopic source signatures for atmospheric lead: the Southern hemisphere. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 64, 3251-3262.
20. Bollhöfer, A., Rosman, K.J.R., 2001. Isotopic source signatures for atmospheric lead: the Northern hemisphere. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 65, 1727-1740.
21. Cheng, H., Hu, Y., 2010. Lead (Pb) isotopic fingerprinting and its applications in lead pollution studies in China: A review. *Environmental Pollution*. (in press)
22. Chow, T.J., 1970. Lead accumulation in roadside soil and grass. *Nature* 225, 295-296.
23. Chu, T.C., Wang, J.J., 1997. Radioactive disequilibrium of uranium and thorium nuclide series in river waters from the Ta-Tun volcanic group area in Taiwan. *Applied Radiation and isotopes* 8, 1149-1155.
24. Doe, B.R., Stacey, J.S., 1974. Application of lead isotopes to problems of ore genesis and ore prospect evaluation-review. *Economic Geology* 69, 757-776.
25. Elbering, B., Asumund, G., Kunzendorf, H., Krogstad, E.J., 2002. Geochemical trends in metal-contaminated fiord sediments near a former lead-zinc mine in west Greenland. *Applied Geochemistry* 17, 493-502.
26. Emmanuel, S., Erel, Y., 2002. Implications from concentrations and isotopic data for Pb partitioning processes in soils. *Geochim et Cosmochim Acta* 66, 2517-2527.
27. Facchinelli, A., Sacchi, E., Mallen, L., 2000. Multivariate statistical and GIS-based approach to identify heavy metal sources in soils. *Environmental Pollution* 114, 313-324.
28. Farmer, J.G., Eades, L.J., 1996. Stable lead isotope record of lead pollution in Loch Lomond sediments since 1630 A.D. *Environmental Science*

- and Technology 30, 3080-3083.
29. Flament, P., Bertho, M.-L., Deboudt, K., Véron, A., Puskaric, E., 2002. European isotopic signatures for lead in atmospheric aerosols: A source apportionment based upon $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ ratios. *The Science of the Total Environment* 296, 35-57.
 30. Gritzner, M.L., Marcus, W.A., Aspinall, R., Custer, S.G., 2001. Assessing landslide potential using GIS, soil wetness modeling and topographic attributes, Payette River, Idaho. *Geomorphology* 37, 149-165.
 31. Hsu, S.C., Liu, S.C., Jeng, W.L., Lin, F.J., Huang, Y.T., Lung, S.C.C., Liu, T.H., Tu, J.Y., 2005. Variations of Cd/Pb and Zn/Pb ratios in Taipei aerosols reflecting long-range transport or local pollution emissions. *The Science of the Total Environment* 347, 111-121.
 32. Hsu, S.C., Liu, S.C., Jeng, W.L., Chou, C.C.K., Hsu, R.T., Huang, Y.T., Chen, Y.W., 2006. Lead isotope ratios in ambient aerosols from Taipei, Taiwan: Identifying long-range transport of airborne Pb from the Yangtze Delta. *Atmospheric Environment* 40, 5393-5404.
 33. Kabata-Pendias, A., Mukherjee, A.B., 2007. *Trace Elements from Soil to Human* (first edition).
 34. Komárek, M., Ettler, V., Chrastný, V., Mihaljevic, M., 2008. Lead isotope in environmental sciences: A review. *Environment International* 34, 562-577.
 35. Kurkjian, R., Dunlap, C., Flegal, A.R., 2004. Long-range downstream effects of urban runoff and acid mine drainage in the Debel River, Armenia : insights from lead isotope modeling. *Applied Geochemistry* 19, 1567-1580.
 36. Lai, H.Y., Chen, Z.S., 2009. In-situ selection of suitable plants for the phytoremediation of multi-metals-contaminated sites in central Taiwan. *International Journal of Phytoremediation*, 11, 235- 250.
 37. Lin, Y.P., Cheng, B.Y., Shyu, G.S., Chang, T.K., 2010. Combining a finite mixture distribution model with indicator kriging to delineate and map the spatial patterns of heavy metal pollution in Chunghua County, central Taiwan. *Environmental Pollution* 158, 235-244.
 38. Marguá, E., Iglesias, M., Queralt, I., Hidalgo, M., 2006. Lead isotope ratio measurement by ICP-QMS to identify metal accumulation in vegetation specimens growing in mining environments. *The Science of the Total Environment* 367, 988-998.
 39. Marguá, E., Iglesias, M., Queralt, I., Hidalgo, M., 2007. Precise and accurate determination of lead isotope ratios in mining wastes by ICP-QMS as a tool to identify their source. *Talanta* 73, 700-709.
 40. Millot, R., Allègre, C.J., Gaillardet, J., Roy, S., 2004. Lead isotopic systematics of major river sediments; a new estimate of the Pb isotopic composition of the upper continental crust. *Chemical Geology* 203, 75-90.
 41. Monna, F., Lancelot, J., Croudace, I.W., Cundy, A.B., Lewis, J.T., 1997. Lead isotopic composition of airborne material from France and the Southern U.K. implications for Pb pollution sources in urban areas. *Environmental Science and Technology* 31, 2277-2286.
 42. Négrel, P., Kloppmann, W., Garcin, M., Giot, D., 2004. Lead isotope signatures of Holocene fluvial sediments from the Loire River valley. *Applied Geochemistry* 19, 957-972.
 43. Norusis M.J., 1993. *SPSS® for Windows™, Professional statistics™*, Release 6.0. SPSS Inc.
 44. Okamoto, Y., 1909. Enargite from Formosa. *Journal of Geological Society of Tokyo* 16, 72-73.
 45. Siklósy, Z., Demény, A., Vennemann, T.W., Pilet, S., Kramers, J., Leél-Össy, S., Bondár, M., Shen, C.-C., Hegner, E., Bronze, 2009. Bronze Age volcanic event recorded in stalagmites by combined isotope and trace element studies. *Rapid Communi-*

- cations in Mass Spectrometry 23, 801-808.
46. Spiro, B., Weiss, D.J., Purvis, O.W., Mikhailova, I., Williamson, B.J., Coles, B.J., Udachin, V., 2004. Lead isotopes in lichen transplants around a Cu smelter in Russia determined by MC-ICP-MS reveal transient records of multiple sources. *Environmental Science and Technology* 38, 6522-6528.
47. Thirlwall, M.F., 2002. Multicollector ICP-MS analysis of Pb isotopes using a ^{207}Pb - ^{204}Pb double spike demonstrates up to 400 ppm/amu systematic errors in Tl-normalization. *Chemical Geology* 184, 255-279.
48. Wang, K.L., Chung, S.L., O'Reilly, S.Y., 2004. Geochemical constraints for the genesis of post-collisional magmatism and the geodynamic evolution in the northern Taiwan region. *Journal of Petrology* 45, 975-1011.
49. Weiss, D.J., Kober, B., Dolgoplova, A., Gallagher, K., Spiro, B., Le Roux, G., Mason, T.F.D., Kylander, M., Coles, B.J., 2004. Accurate and precise Pb isotope ratio measurements in environmental samples by MC-ICP-MS. *International Journal of Mass Spectrometry* 232, 205-215.
50. Zhang, C., 2006. Using multivariate analyses and GIS to identify pollutants and their spatial patterns in urban soils in Galway, Ireland. *Environmental Pollution* 142, 501-511.

收稿日期：民國 99 年 3 月 4 日

修正日期：民國 99 年 4 月 12 日

接受日期：民國 99 年 4 月 19 日