

**P**olyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK; **Bild 1**) bestehen aus mindestens drei oder mehr kondensierten Benzolringen und sind Produkte unvollständiger Verbrennungsprozesse. Weltweit werden jährlich ca. 200.000 t dieser Substanzen in die Weltmeere eingetragen und sind dort überall nachweisbar. Ihr Nachweis und ihre Quantifizierung im marinen Millieu sind wichtig, da für einige ihrer Vertreter eine hohe karzinogene und mutagene Wirkung nachgewiesen ist [1].

Hauptquelle für diese Kontaminationen sind PAK-belastete atmosphärische Stäube, die durch Heiz- und Kfz-Emissionen kontaminiert wurden. In Meeresbereiche wie die Ostsee werden PAK über die Atmosphäre und Flüsse wie die Oder eingetragen [2]. Weitere PAK-Quellen stellen Abwässer oder Ölverschmutzungen durch die Schifffahrt dar. In diesem Zusammenhang ist es wichtig, darauf hinzuweisen, daß auch Bakterien, Algen und Pilze PAK synthetisieren können, jedoch lediglich in äußerst geringen Mengen.

Die PAK-Löslichkeit im Meerwasser ist gering und nimmt mit steigendem Molekulargewicht ab. Im Meerwasser werden PAK leicht an Schwebstoffe gebunden und mit diesen letztendlich als Sediment abgelagert.

Es ist das Ziel dieses Artikels, die PAK-Konzentrationen in Oberflächensedimenten des Arkona-Beckens beckenweit zu erfassen und Variationen im PAK-Muster in Zusammenhang mit den ozeanographischen Prozessen in diesem sehr dynamischen System zu betrachten, um das PAK-Akkumulationspotential zu überprüfen und dessen Steuergrößen herauszuarbeiten.

# MÜLLKIPPE OSTSEE?

## Das Akkumulationspotential der Sedimente des Arkona-Beckens (südliche Ostsee) für polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe

Von Hans-Martin Schulz und Mathias Ricking

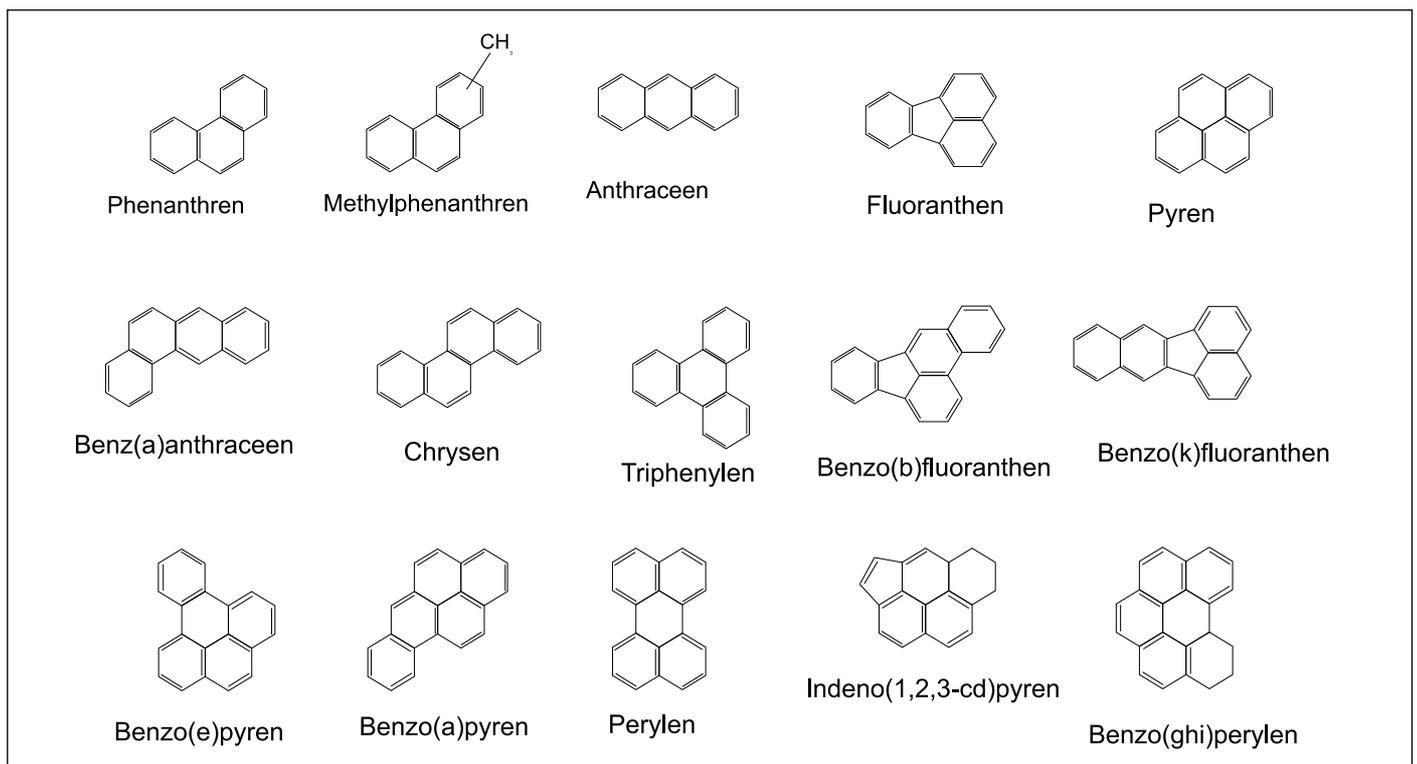
### Das Untersuchungsgebiet

Die Ostsee ist ein flaches Binnenmeer mit einer durchschnittlichen Wassertiefe von ca. 52 m, berücksichtigt man ihre Ausdehnung von ca. 415.000 km<sup>2</sup>. Sie wird gegliedert in eine Reihe von Becken- und Schwellenstrukturen (**Bild 2**).

Die flache Morphologie des Ostseebeckens und insbesondere des Arkona-Beckens, einer Beckenstruktur in der südlichen Ostsee, ist Ursache für ein sehr variables und dynamisches Sedimentationsregime, was sich in vermehrt lateralen statt vertikalen Transportprozessen darstellt. Folge dieser Prozesse sind häufig durchmischte Sedimentlagen [3]. Darüber hinaus wird der westliche Bereich der Ostsee durch periodische sauerstoffreiche Salzwassereinströme aus der Nordsee beeinflusst. Diese Ereignis-

se führen zu kurzzeitigen Belüftungen der zu meist im Beckenzentrum herrschenden Sauerstoffarmut des Bodenwassers [4].

Das Arkona-Becken ist eine flache, fast konzentrische Becken-Struktur mit einer maximalen Wassertiefe von 55 m, das feinkörnige Sedimente akkumuliert, die reich an organischem Kohlenstoff sind. Das abgelagerte organische Material ist eine Mixtur aus natürlichen und anthropogen gebildeten Verbindungen, insbesondere PAK [5, 6]. Saisonal stark variierende Eintragsquellen der PAK stellen die im Süden mündende Oder sowie atmosphärische Depositionen dar. Während der südliche Bereich des Arkona-Beckens im wesentlichen durch PAK-kontaminierte Einträge der Oder beeinflusst wird, ist im zentralen und nördlichen Arkona-Becken darüber hinaus ein vermehrter atmosphärischer PAK-Eintrag zu verzeichnen [6]. ▶



**Bild 1: Ausgewählte PAK, die in diesem Artikel besprochen werden**

### Untersuchung der Sedimente

Die Oberflächensedimente (0 bis 1 cm; Probenlokationen sind in **Bild 3** dargestellt) wurden mit einem Kastengreifer während zweier Ausfahrten mit dem Forschungsschiff Prof. A. Penck (Inst. f. Ostseeforschung Warnemünde) im April 1995 beprobt. Die Lagerung der Sedimente erfolgte in vorgereinigten Aluminiumbehältern bei -21 °C.

Nach einer Gefrierdrying der Sedimente und dreifacher Extraktion mittels Ultraschall (jeweils 10 Minuten mit Dichlormethan) wurde der Rohextrakt durch HCl-aktiviertes und mit Wasser, Aceton und Dichlormethan gespültes Kupferblech entschwefelt. Nach der Zentrifugation der Probenbehälter und Abpipettieren des Überstandes, erfolgte die Einengung der einzelnen Rohextrakte.

Die Dichlormethan-Extrakte ließen sich mittels einer Niederdruck ("flash")-Säulenchromatographie in die Fraktionen der gesättigten und aromatischen Kohlenwasserstoffe sowie in die Fraktion der Heterokomponenten auftrennen.

Zur säulenchromatographischen Auftrennung der Extrakte dienten mit trockenem, aktiviertem Kieselgel (Kieselgel 60, Korngröße 0,04 bis 0,063 mm, Fa. Merck) befüllte Glassäulen (=1,2cm; Länge = 60 cm). Die Füllhöhe betrug 40 cm und das Kieselgel wurde mit Hexan vorgespült. Der auf aktiviertes Kieselgel aufgezoogene Extrakt wurde auf die Kieselgelsäule aufgetragen und im folgenden mit je 35ml n-Hexan, 10:90 Dichlormethan/n-Hexan, Dichlormethan und Methanol in 4 Fraktionen chromatographiert und eingeeengt.

Die PAK-Untersuchungen der 2. Fraktion wurden auf einem GC-FID (HR 8000 GC; Fa. Fisons-Instruments; Detektortemperatur 310 °C) mit Helium (Flußrate 1,2 ml/min) als Trägergas durchgeführt. Als Kapillarsäule diente eine Fused Silica-Kapillarsäule (DB5-HT, Fa. J&W Scientific, 30 m Länge, 0,32 mm Innendurchmesser, 0,25 µm Filmdicke). Die Injektion von je 1 µl Endextrakt in Dichlormethan erfolgte cold-on-column, und das Temperaturprogramm begann bei 35 °C (2 min) und wurde mit einer Heizrate von 5 °C/min auf 330 °C (20 min) gesteigert.

Die quantitative Auswertung der Gaschromatogramme erfolgte über Vergleich mit externen Standardsubstanzen. Die in **Bild 2b** dargestellte PAK-Summe (ng/g Trockensubstanz TS) resultiert aus der Summe folgender PAK: Phenanthren, Anthracen, Fluoranthen, Pyren, Benz(a)anthracen, Triphenylen/Chrysen, Benz(b,j,k)fluoranthren, Benz(e)pyren, Benz(a)pyren, Benz(ghi)perylen und Indeno(1,2,3-cd)pyren. Die qualitative Analyse der PAK-Fraktionen wurde unter gleichen GC-Konditionen mittels GC/MS (Fisons 5168 GC mit Fisons Trio 1000 MS mit Lab.Base 2.5-Datenverarbeitungssystem; Elektronenstoßionisation bei 70 eV) im Scan-Modus von 50 -700 Dalton (1,2 Scans/s) realisiert. Die Identifikation der detektierten Substanzen erfolgte mittels Interpretation der Massenspektren, Koinjektion bekannter und ausgewerteter Vergleichsfraktionen und durch Vergleich mit der Spektrenbibliothek des Datensystems und publi-

zierten Gaschromatogrammen ähnlicher Fraktionen.

Der Gehalt an organischem Kohlenstoff (C<sub>org</sub>) wurde mittels eines Metalyst CS Analysers (Fa. ELTRA, CS-500) nach Entfernung des Karbonatkohlenstoffs durch Ansäuern mit HCl bestimmt.

### Ergebnisse und Diskussion

Der Gehalt an organischem Kohlenstoff C<sub>org</sub> in den Oberflächensedimenten spiegelt die nahezu konzentrische Beckenmorphologie wider (**Bild 4a**). Der Anstieg der C<sub>org</sub>-Gehalte zum Beckenzentrum ist Ausdruck unterschiedlicher Ablagerungsbedingungen der Oberflächensedimente. An den Beckenrändern werden sandig-siltige Sedimente abgelagert, die zum Beckenzentrum deutlich feinkörniger werden (bis hin zu rein tonigen Sedimenten) [7]

und ein höheres Erhaltungspotential für organische Komponenten liefern, da sich schon im frisch abgelagerten Sediment schnell reduzierende sauerstoffarme Bedingungen einstellen. Reduzierende Bedingungen vermindern den bakteriellen Abbau von organischem Material. Generell ist ein enger Zusammenhang zwischen C<sub>org</sub>-Gehalten und Korngrößen einerseits und der Wassertiefe andererseits gegeben, der sich in der räumlichen Verteilung dieser Parameter als Resultat physikalischer Sortierungsprozesse darstellt. Die tieferen Beckenbereiche sind ferner durch häufige und intensive Anoxie des Bodenwassers geprägt [8]. Diese Redoxbedingungen sind saisonal gesteuert und während der kalten Jahreszeit weniger ausgeprägt. Ferner werden die Beckenbereiche der Ostsee durch periodische Einstromereignisse mit sauerstoffreichem Wasser aus der Nordsee belüftet [4], wodurch sich kurzzeitige oxidierende Bedingungen im Bodenwasser einstellen.

Die gemessenen Konzentrationen stehen im Einklang mit PAK-Maximalkonzentrationen von 1900 ng/g TS für das Arkona-Becken [9]. Die räumliche Verteilung der PAK-Konzentrationen (ng/g TS; **Bild 4b**) folgt den oben beschriebenen Verteilungen und illustriert eine starke Abhängigkeit der PAK-Konzentrationen vom C<sub>org</sub>-Gehalt der Oberflächensedimente [5]. Hohe Anteile an C<sub>org</sub> und Tonmineralen fördern die Konservierung von organischen Kontaminanten in Sedimenten und vermindern einen bakteriell gesteuerten PAK-Abbau [10]. Ein Großteil der sedimentär gebundenen PAK stammt aus Heizemissionen aus dem Großraum nördliches Mecklenburg-Vorpommern [6]. PAK-Zusammensetzungen aus



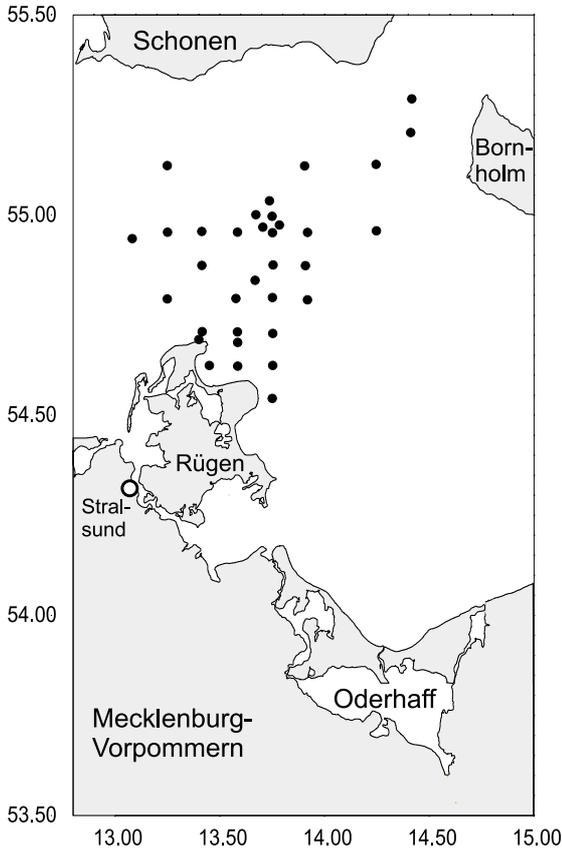
**Bild 2: Bathymetrie der Ostsee (verändert nach Seifert, Kayser & Tauber, 1996).**

Hellgraue Farben an den Küsten zeigen flaches Wasser an, dunkelgraue bis schwarze Farben die tiefsten Beckenbereiche.

Heizemissionen werden als wesentlich stabiler angesehen als PAK aus Kfz-Emissionen [11].

Die PAK-Muster der Oberflächensedimente im Arkona-Becken sind nicht einheitlich, sondern weisen lokale Variationen auf, die auf unterschiedliche PAK-Quellen und Redox-Veränderungen sowie selektive Biodegradation, Löslichkeit und Photo-Oxidation einzelner PAK hinweisen. Derartige Nachweise werden durch Anwendung spezifischer PAK-Quotienten und relativer Verteilungsmuster geführt [11, 12, 13, 14].

Die Darstellung relativer PAK-Verteilungsmuster wird in der englischsprachigen Literatur als parent compound distributions (PCD) [11], parent PAH series [12] oder PAH distribution patterns [13] bezeichnet. Diese Art der Auswertung von PAK-Mustern wird zur Erfassung und Abgrenzung östlicher PAK-Quellen gegenüber PAK aus Verbrennungsprozessen (Heizungen, Kfz-Emissionen) genutzt. Sie basiert auf der größeren Dominanz der Vier-, Fünf- und Sechsring-PAK in Verbrennungsprodukten infolge höherer Bildungstemperaturen gegenüber natürlichen Erdölen, in denen Zwei- und Dreiring-PAK dominieren. Die PAK-Quotienten der 3-Ring-PAK zu Benz[a]anthracen (178/BaA) im Arkona-Becken dokumentieren eine starke Verarmung der niedermolekularen PAK im südwestlichen Bereich (**Bild 5a**) und eine bevorzugte Deposition der hochmolekularen 5-Ring-PAK im Beckenzentrum (252/BaA; **Bild 5b**). Die Verteilung der hochmolekularen Vertreter verdeutlicht eine verstärkte Akkumulation von PAK aus Verbrennungsprozessen im Beckenzentrum, die von Baumgard et al. (1999) bestätigt wird [14] und von Gustavson & Jonsson 1999 für persistente ha- ▶



**Bild 3: Stationen der Beprobung der Oberflächensedimente im Arkona-Becken und Randbereichen**

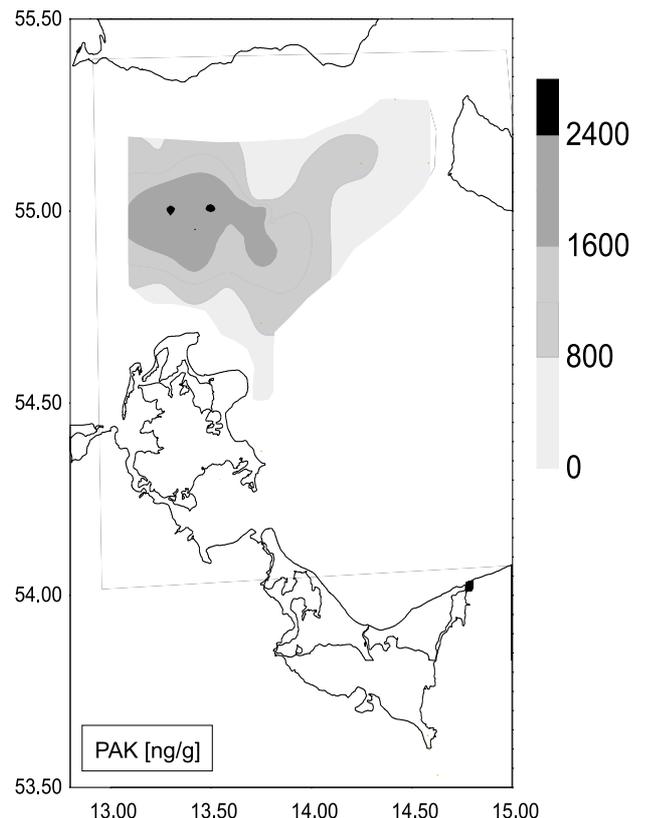
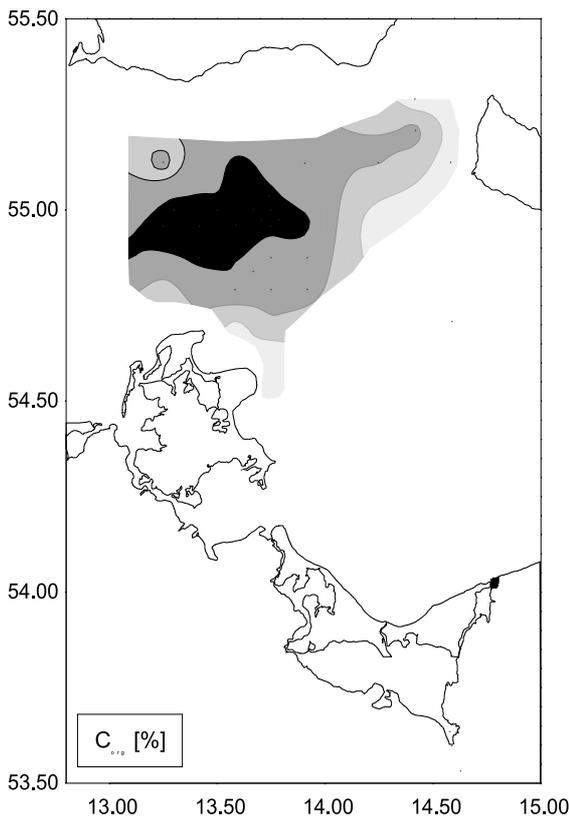
logenorganische Kontaminanten registriert wurde [15]. Diese PAK sind wesentlich stabiler gegenüber bakteriellem Abbau als PAK aus Ölverschmutzungen [16]. Ursache hierfür ist deren Einbindung in Rußpartikel [17]. Demgegenüber können PAK aus Mineralölen wesentlich leichter abgebaut werden, da sie in dünnen Wasserfilmen stärker exponiert (z. B. für Photo-Oxidation) und bioverfügbar sind [18]. Das Minimum der niedermolekularen PAK im Süden und Westen des Beckens resultiert aus dem direkten Einfluß der Oder im Südteil und periodischen Salzwassereintrüben aus der Nordsee im Westteil. Beide Wassermassen sind sauerstoffreich und ermöglichen eine stärkere bakterielle Degradation der niedermolekularen PAK. Ein Beleg für stärker oxidierende Bedingungen im Westteil des Beckens ist eine an entsprechende Redoxbedingungen adaptierte und dort auftretende Zoobenthos-Artenverteilung (frdl. mündl. Mitt. M. Powilleit, Rostock). Generell sind die niedermolekularen PAK

wesentlich sensitiver gegenüber bakterieller Degradation, insbesondere in Sedimenten mit geringen  $C_{org}$ -Gehalten und Tongehalten [10].

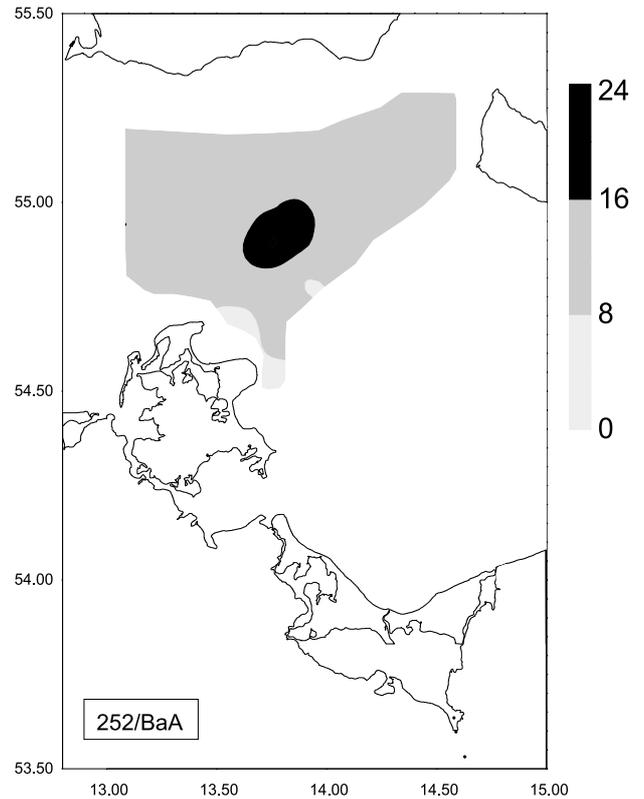
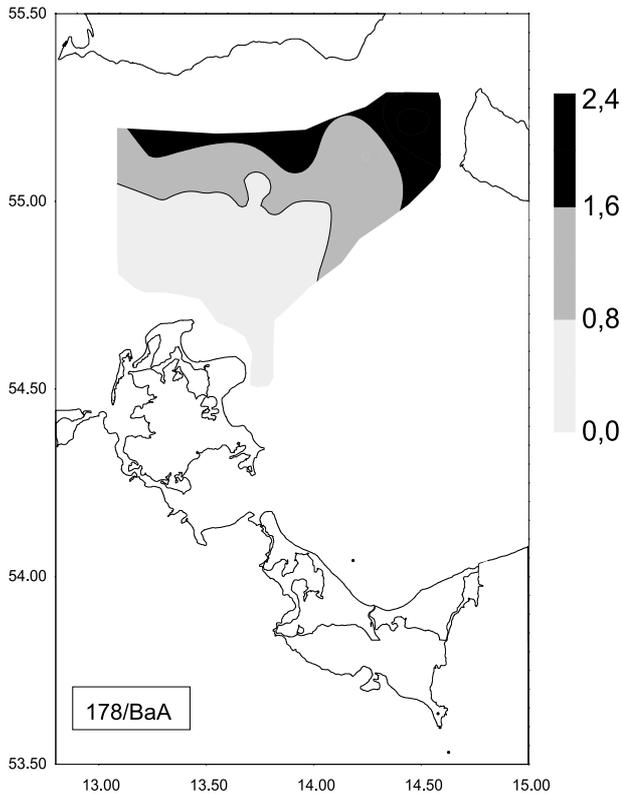
Ein häufig berechneter PAK-Quotient stellt das Verhältnis der fünf Monomethylphenanthrene zu dem nicht-alkylierten Phenanthren (MP/P) [19] dar, der in den Sedimenten des Arkona-Beckens abnehmende Werte von Südwesten (maximale MP/P-Werte von 8) nach Nordosten (minimale MP/P-Werte von <0,2) aufzeigt (Bild 6a).

MP/P-Verhältnisse von 2 bis 6 in Sedimenten weisen auf Kontaminationen durch Erdöle hin, MP/P-Werte von 0,5 bis 1 belegen PAK-Emissionen aus Verbrennungsprozessen. Einschränkend ist zu bedenken, daß durch mehrere bakteriell gesteuerte Prozesse eine Modifikation des Quotienten erfolgen kann: z.B. (a) durch einen verringerten Abbau mit steigendem Alkylierungsgrad [19] mit daraus resultierender höherer Stabilität gegenüber dem unsubstituierten Phenanthren [20, 21] oder (b) eine bakteriell gesteuerte Bildung von alkylierten Spezies aus Phenanthren [22, 23].

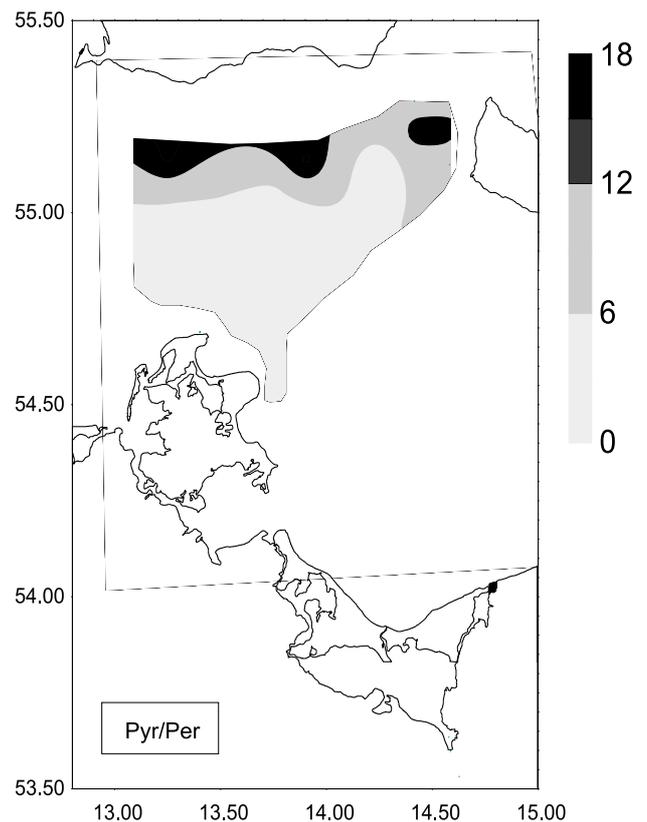
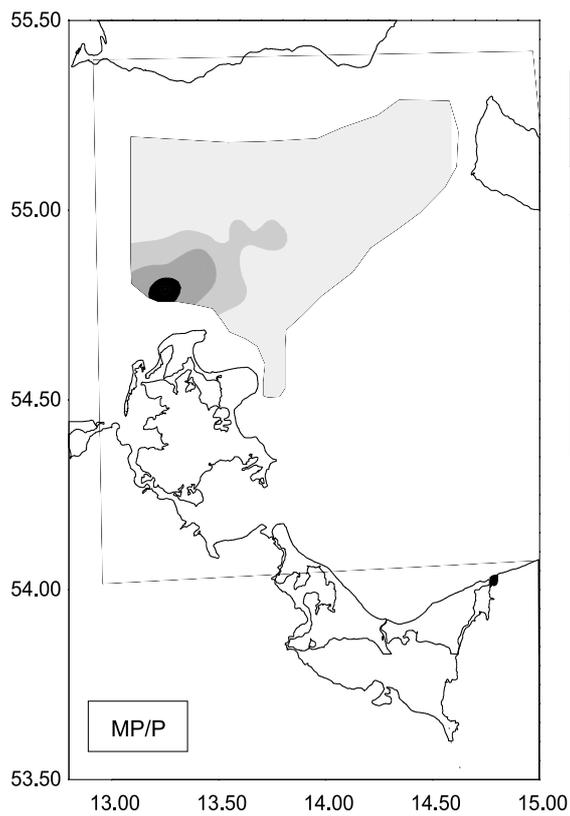
Der Quotient Pyren zu Perylen (Pyr/Per) wird genutzt, um zwischen Perylen-Einträgen aus anthropogenen Quellen (Kfz-Verkehr, Heizungen) und diagenetisch aus terrestrischen und/oder marinen Vorläufermolekülen gebildetem Perylen [24, 25, 26] zu differenzieren. Anthropogene PAK-Emissionsquellen zeichnen sich durch ein Pyr/Per-Verhältnis von 0,8 bis 15 aus [24]. In den Oberflächensedimenten des Arkona-Beckens läßt sich ein zunehmender Gradient dieses Quo- ▶



**Bild 4a,b: Gehalte an organischem Kohlenstoff ( $C_{org}$ ) und PAK-Summe (ng/g TS) der Oberflächensedimente**



**Bild 5a,b:** PAK-Verteilungsmuster der Oberflächensedimente 178 = Phenanthren + Anthracen, 252 = Benzfluoranthene + Benz(e)pyren + Benz(a)pyren + Perylen. Die Normierung erfolgte auf das Benz(a)anthracen (BaA)



**Bild 6a,b:** Darstellung ausgewählter PAK-Quotienten der Oberflächensedimente Monomethylphenanthrene/Phenanthren (MP/P), Pyren/Perylen (Pyr/Per)

tienten von Süden nach Norden feststellen (Bild 6b), der auf einen starken Einfluß diagenetisch gebildeten Perylens im Süden und Zentralbereich des Beckens deutet, aus terrestrischem Eintrag [14] und resuspendiertem Sediment aus dem Oderhaff stammt und als fluviatiler Tracer für den Oder-Eintrag eingesetzt werden kann [6]. Entsprechende Erkenntnisse für einen derartigen Interpretationsansatz stammen aus dem Gironde-Ästuar [25].

### Schlußfolgerungen

Polzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe werden im Arkona-Becken hauptsächlich im Beckenzentrum im Einklang mit Witt [5] und Witt & Trost [9] akkumuliert. Der fluviatile Eintrag resuspendierten Sedimentmaterials aus dem Oderhaff, das sich durch relativ höhere Konzentrationen an Perylen auszeichnet, läßt sich mit abnehmendem Gradienten bis in das Beckenzentrum rekonstruieren. Neben PAK-Kontaminationen aus Verbrennungsprozessen sind insbesondere im näheren Umfeld von Rügen Ölkontaminationen anhand der PAK-Muster nachweisbar, die durch Hafens- und Fähraktivitäten bedingt sind und für die Kieler Bucht von Baumgard et al. [14] postuliert wurden.

Das Akkumulationspotential der PAK wird im wesentlichen durch den Gehalt an organischem Kohlenstoff und die Korngröße der Oberflächensedimente beeinflusst, deren Verteilung durch die vorherrschenden physikalischen Bedingungen am Beckenboden gesteuert wird. Darüber hinaus bewirken die vorherrschenden Redox-Bedingungen im Bodenwasser Konzentrationsabnahmen der niedermolekularen PAK (möglicherweise bakteriell induziert), die im südlichen und westlichen Beckenbereich durch Beeinflussung oxidierender Bodenwässer auftreten.

Insbesondere abnehmende PAK-Emissionen durch Ersatz von Kohleheizungen und somit geringere PAK-Kontaminationen atmosphärischer Schwebstoffe in Mecklenburg-Vorpommern [27] sowie eine Verminderung fluviatil eingetragener PAK lassen langfristig eine Verminderung der PAK-Kontaminationen der Oberflächensedimente des Arkona-Beckens erwarten, das weiterhin aufgrund der lokalen ozeanographischen Bedingungen eine Senke für PAK bleiben wird.

### Literatur

[1] Lipiatou, E.; A. Saliot: Fluxes and transport of anthropogenic and natural polycyclic aromatic hydrocarbons in the western Mediterranean Sea. *Marine Chemistry* 32 (1991), pp. 51–71.  
 [2] Lipiatou, E.; J. Albaiges: Atmospheric deposition of hydrophobic organic chemicals in the northwestern Mediterranean Sea: comparison with the Rhone river input. *Marine Chemistry* 46 (1994), pp. 153–164.  
 [3] Leipe, T.; T. Neumann; K. C. Emeis: Schwer-

metallverteilung in holozänen Ostseesedimenten. *Untersuchungen im Einflußbereich der Oder. Geowissenschaften* 12 (1995), S. 470–478.  
 [4] Matthäus, W.; H. Franck: Characteristics of major Baltic inflows – a statistical analysis. *Cont. Shelf Res.* 12 (1992), pp. 1375–1400.  
 [5] Witt, G.: Polycyclic aromatic hydrocarbons in water and sediment of the Baltic Sea. *Mar. Poll. Bull.* 31 (1995)(4-12), pp. 237–248.  
 [6] Schulz, H. M.; K. C. Emeis: Sources and pathways of natural and anthropogenic hydrocarbons into the natural dump “Arkona Basin” (Southern Baltic Sea). *Environ. Geol.*, 39(2000)(8), pp. 839–848.  
 [7] Harff J.; W. Lemke; F. Tauber; E. M. Emeilyanov: Geologische Kartierung der Ostsee. *Geowissenschaften* 19 (1995), S. 442–447.  
 [8] Nehring, D.: Gase. In: *Meereskunde der Ostsee (Hrsg. G. Rheinheimer)*, S. 91–97. Springer Berlin, Heidelberg 1996.  
 [9] Witt, G.; E. Trost: Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in sediments of the Baltic Sea and of the German coastal waters. *Chemosphere* 38 (1999), pp. 1603–1614.  
 [10] Gardner, W. S.; R. F. Lee; K. R. Tenore; L. W. Smith: Degradation of selected polycyclic aromatic hydrocarbons in coastal sediments: importance of microbes and polychaete worms. *Water, Air and Soil Pollution* 31 (1979), pp. 339–347.  
 [11] Yunker, M. B et al.: Polycyclic aromatic hydrocarbon composition and potential sources for sediment samples from the Beaufort and Barents Seas. *Environ. Sci. Technol.* 30 (1996), pp. 1310–1320.  
 [12] Lake, J. L.; C. Norwood; C. Dimock; R. Bowen: Origins of polycyclic aromatic hydrocarbons in estuarine sediments. *Geochim. Cosmochim. Acta* 43 (1979), pp. 1847–1854.  
 [13] Lipiatou, E.; J. C. Marty; A. Saliot: Sediment trap fluxes of polycyclic aromatic hydrocarbons in the Mediterranean Sea. *Marine Chemistry* 44 (1993), pp. 43–54.  
 [14] Baumgard, P.; H. Budzinski; P. Garrigues; H. Dizer; P.D. Hansen: Polycyclic aromatic hydrocarbons in recent sediments and mussels (*Mytilus edulis*) from the Western Baltic Sea: occurrence, bioavailability and seasonal variations. *Marine Environmental Research* 47 (1999), pp. 17–47.  
 [15] Gustavson, K.; P. Jonsson: Some halogenated organic compounds in sediments and blue mussel (*Mytilus edulis*) in Nordic Seas. *Marine Pollution Bulletin* 38 (1999), pp. 723–736.  
 [16] Jones, D. M.; S. J. Rowland; A. G. Douglas: An examination of the fate of Nigerian Crude oil in surface sediments of the Humber Estuary by gas chromatography and gas chromatography-mass spectrometry. *Intern. J. Environ. Anal. Chem.* 24 (1986), pp. 227–247.  
 [17] Gschwend, P. M.; R. A. Hites: Fluxes of poly-

cyclic aromatic hydrocarbons to marine and lacustrine sediments in the northeastern United States. *Geochim. Cosmochim. Acta* 45 (1981), pp. 2359–2367.  
 [18] Lee, R. F.; C. Ryan: Microbial and photochemical degradation of polycyclic aromatic hydrocarbons in estuarine waters and sediments. *Can. J. Fish Aquat. Sci.* 40 (2) (1983), pp. 86–94.  
 [19] Prahl, F. G.; R. Carpenter: Polycyclic aromatic hydrocarbon (PAH)-phase associations in Washington coastal sediment. *Geochim. Cosmochim. Acta* 47 (1983), pp. 1013–1023.  
 [20] Douglas, G. S.; A. E. Bence; R. C. Prince; S. J. McMillen; E. L. Butler: Environmental stability of selected petroleum hydrocarbon source and weathering ratios. *Environ. Sci. Technol.* 30 (1996), pp. 2332–2339.  
 [21] Leeming, R.; W. Maher: Sources of polycyclic aromatic hydrocarbons in Lake Burley Griffin, Australia. *Org. Geochem.* 18 (5) (1992), pp. 647–655.  
 [22] Solanas, A. M.; R. Pares; J. M. Bayona; J. Albaiges: Degradation of aromatic petroleum hydrocarbons by pure microbial cultures. *Chemosphere* 13 (1984), pp. 593–601.  
 [23] Walker, J. D.; R. R. Colwell; L. Petrakis: Microbial petroleum degradation. Application of computerized mass spectrometry. *Can. J. Microbiology* 21 (1975), pp. 1760–1767.  
 [24] Venkatesan, M. I.: Occurrence and possible sources of perylene in marine sediments – a review. *Marine Chemistry* 25 (1988), pp. 1–27.  
 [25] Budzinski, H.; I. Jones; J. Bellocq; C. Piérard; P. Garrigues: Evaluation of sediment contamination by polycyclic aromatic hydrocarbons in the Gironde estuary. *Marine Chemistry* 58 (1997), pp. 85–97.  
 [26] Silliman, J.E.; P.A. Meyers; B.J. Eadie: Perylene: an indicator of alteration processes or precursor materials? *Organic Geochemistry* 29 (1998), pp. 1737–1744.  
 [27] Landesamt für Umwelt und Natur Mecklenburg-Vorpommern (LAUN): Luftgütebericht 1994/1995. Schwerin 1995.

Dr. Hans-Martin Schulz  
 Institut für Geologie und Paläontologie  
 Leibnizstraße 10  
 38678 Clausthal-Zellerfeld  
 Tel.: (05323)72-3112  
 Fax: (05323)72-2903  
 E-Mail: schulz@geologie.tu-clausthal.de

Dipl.-Geogr. Mathias Ricking  
 Freie Universität Berlin  
 Institut für Geographie  
 FU-GEOLAB  
 Abt. Organische Umweltgeochemie  
 Malteserstr. 74–100  
 12249 Berlin  
 E-Mail: ricking@zedat.fu-berlin.de