# Universität Augsburg Wissenschaftszentrum Umwelt Jahresbericht 2016



#### **PROJEKTTEAM**

- M. Sc. Esther Giemsa esther.giemsa@geo.uni-augsburg.de Tel.: 0821 598 2727
- Prof. Dr. Jucundus Jacobeit jucundus.jacobeit@geo.uni-augsburg.de Tel.: 0821 598 2662
- Dr. Ludwig Ries ludwig.ries@uba.de

#### PROJEKTPARTNER

- Virtuelles Alpenobservatorium (VAO), Umweltforschungsstation Schneefernerhaus
- Umweltbundesamt (UBA), Global Atmosphere Watch (GAW) Plattform Zugspitze
- Deutscher Wetterdienst (DWD), Radioaktivitätsüberwachung
- Leibniz Rechenzentrum (LRZ), Distributed Resources Group
- Deutsches Zentrum f
  ür Luft und Raumfahrt (DLR), Deutsches Fernerkundungsdatenzentrum (DFD) – Atmosphäre

# FÖRDERUNG

 Diese Forschungsarbeit ist Teil des Projekts "Virtuelles Alpenobservatorium (VAO): Ausbau und Internationalisierung des Virtuellen Alpenobservatoriums (VAO II) an der Umweltforschungsstation Schneefernerhaus (UFS)" und wird vom Bayerischen Staatsministerium für Umwelt und Verbraucherschutz finanziert.

#### PROJEKTLAUFZEIT

• Januar 2015 - Dezember 2016

#### Worum geht es?

Das Klima unserer Erde wird von der Sonnenenergie gesteuert, die von der Erdoberfläche und der Atmosphäre absorbiert wird. Die Absorptionsrate der Sonnenstrahlung auf ihrem Weg zur Erdoberfläche und wieder zurück hängt maßgeblich von der atmosphärischen Konzentration und Zusammensetzung der klimawirksamen Spurengase ab. Durch anthropogene Emissionen werden diese derart verändert, dass sie den für das Leben auf der Erde notwendigen natürlichen Treibhauseffekt verstärken. Prominentester Vertreter der vom Menschen produzierten Treibhausgase ist das Kohlendioxid ( $CO_2$ ). Als beitragsstärkstes Klimagas ist es der Hauptverursacher der globalen Erwärmung, die seit Beginn der Industrialisierung ab dem Jahr 1750 den natürlichen Treibhauseffekt intensiviert.

Im vergangenen Jahr wurde auf Deutschlands höchstem Gipfel ein Rekord verzeichnet: Das Jahresmittel des atmosphärischen Kohlendioxidgehalts überschritt erstmals die Marke von 400 ppm (parts per million = Volumenanteile pro Million). Zum Vergleich: Das  $CO_2$ -Niveau vorindustrieller Zeit lag bei etwa 280 ppm und war in den vorangegangenen 10.000 Jahren annähernd konstant. Im März 2015 erreichte der Monatsdurchschnitt auf der Zugspitze sogar über 405 ppm. Diese Jahreshöchstwerte werden typischerweise im Frühjahr gemessen, da kurz vor dem Einsetzen der nordhemisphärischen Pflanzenwachstumsphase die Assimilation des Kohlendioxids

noch gering ist. In der anschließenden Jahreshälfte dominierender Photosynthese wird im August das  $CO_2$ -Jahresminimum erreicht. Überprägt wird der Kohlenstoffkreislauf der Biosphäre von dem weltweit ansteigenden  $CO_2$ -Trend, der zu erheblichen Teilen aus der Verbrennung fossiler Energieträger resultiert. Rund 300 m unterhalb des Zugspitzgipfels auf der Südseite von Deutschlands höchstem Berg befindet sich die Umweltforschungsstation Schneefernerhaus, deren langjährige  $CO_2$ -Messzeitreihe seit dem Jahr 2002 (und zuvor seit 1981 direkt am Gipfel gemessen) diese Interferenz natürlicher und anthropogener Quellen und Senken aufzeigt (Abb. 1). Das Zusammenspiel von Mensch und Biosphäre als Emittenten bzw. Absorber in Verbindung mit der langen atmosphärischen Verweilzeit des Kohlendioxids von durchschnittlich 120 Jahren verhindert, dass atmosphärische Messungen unmittelbar Auskunft über Änderungen der regionalen Emissionssituation geben können. Um aus den hochpräzisen  $CO_2$ -Messzeitreihen Größen klimapolitischer Dimension abzuleiten, auf deren Basis effiziente Emissionsminderungsmaßnahmen verifiziert und gegebenenfalls angepasst werden können, bedarf es daher einer differenzierten Aufschlüsselung der Messdaten nach ihrer Herkunft.



Abb. 1: Monats- und Jahresmittel der CO<sub>2</sub>-Konzentration (ab dem Jahr 2002 an der Umweltforschungsstation Schneefernerhaus, zuvor am Zugspitzgipfel gemessen)

### Datenfilterung zur Identifizierung der CO<sub>2</sub>-Hintergrundkonzentration

Obwohl die Umweltforschungsstation auf einer Höhe von 2.650 m fernab von Emissionsquellen liegt und als Mitglied des internationalen Atmosphärenbeobachtungsprogramms Global Atmosphere Watch (GAW) der UN-Weltmeteorologieorganisation (WMO) Luftschichten überregionaler Repräsentativität detektiert, befindet sie sich dennoch episodisch im Einflussbereich der planetaren Grenzschicht, die periodisch auch bodennahe Luftmassen beinhaltet. Aus diesem Grund sind die Messreihen zunächst einer zuverlässigen Datenfilterung zu unterziehen, die neben der Identifizierung von lokalen Kontaminationen eine Differenzierung der Messwerte nach den Kategorien ,großräumige Hintergrundkonzentration' und ,regionaler Ursprung' erlaubt. Da die genaueste Filtermethode standortabhängig und daher für jede Messstation individuell auszuwählen ist (Kaiser et al. 2007, Ruckstuhl et al. 2012), wurde eine Vielzahl unterschiedlicher Filteransätze für den fünfjährigen Untersuchungszeitraum 2011 - 2015 auf die CO<sub>2</sub>-Messungen der GAW-Station Schneefernerhaus angepasst, darunter klassische meteorologische Filterverfahren, die beispielsweise Windgeschwindigkeiten als Proxy für kontaminierte Luftmassen nutzen (Fang et al. 2014/2015, Zellweger et al. 2003). Dabei werden CO<sub>2</sub>-Konzentrationen, die während Windgeschwindigkeiten von unter 1,0 m/s aufgezeichnet werden, als lokal bzw. regional beeinflusst deklariert. Der Grenzwert leitet sich von der deutlichen Abnahme der Standardabweichung der CO<sub>2</sub>-Messwerte für Windgeschwindigkeiten von über 1.0 m/s ab.

Eine ebenfalls weit verbreitete Methodik der Datenfilterung basiert auf dem Tagesgang der solaren Einstrahlung, durch den kontaminierte Luftmassen tageszeitlich schwankend an die Umweltforschungsstation herangeführt werden. Insbesondere die nächtlichen bis frühen Morgenstunden sind die am geringsten von allochthoner (fremdbürtiger) Witterung beeinflusste Tageszeit. Darauf basierend werden ausschließlich Messungen dieses Zeitfensters der Hintergrundkonzentration zugeordnet. Deutlich differenzierter im Hinblick auf die Herkunft der Luftmassen funktioniert der Filteransatz mittels Tracern. Als besonders präziser Tracer für bodennahe Luftschichten hat sich Radon in neueren Studien etabliert und ergänzt zu diesem Zweck nun vermehrt das Messgrößenspektrum an Standorten überregionaler Repräsentativität. Auch am GAW-Globalobservatorium Zugspitze/ Schneefernerhaus betreiben der Deutsche Wetterdienst und das Umweltbundesamt gemeinsam Radonmessungen, um in den Messreihen atmosphärischer Klimagase zuverlässig Einflüsse nicht repräsentativer, bodennaher Luftmassen zu erkennen. Radon als natürlich vorkommendes Radionuklid besitzt beste Tracer-Eigenschaften für die Herkunftsanalyse von Luftmassen. Da der Uran/ Radium-Zerfall kontinuierlich im Gestein der Erdkruste stattfindet, entweicht das Zerfallsprodukt Radon permanent der eisfreien Erdoberfläche. Als Edelgas fällt es keinen atmosphärisch-chemischen Umwandlungsprozessen oder anderen Senken zum Opfer, sondern erreicht seine relativ kurze Halbwertszeit von 3,8 Tagen ausschließlich durch radioaktiven Zerfall. Gegenüber der generell niedrigen troposphärischen Hintergrundkonzentration sind Variationen in den Radonwerten durch veränderte atmosphärische Transportbedingungen gut detektierbar

und ein direkter Anzeiger für terrestrisch beeinflusste Luftmassen (Chambers et al. 2016). Hohe Radon-Konzentrationen geben folglich einen Hinweis auf bodennahe Luftschichten, während niedrige Radonwerte von Luftmassen der freien Troposphäre zeugen. Im Vergleich mit den CO<sub>2</sub>-Daten der marinen Grenzschicht der Atmosphäre der Nationalen Ozean- und Atmosphärenbehörde (National Oceanic and Atmospheric Administration, NOAA), die als Referenzwerte unbeeinflusster Luftmassen für die Validierung der einzelnen Filtervarianten und schließlich die Identifikation des stationsspezifisch besten Filterprinzips herangezogen werden (Dlugokencky et al. 2015), erzielen die CO<sub>2</sub>-Hintergrundkonzentrationen des Radon-Filterverfahrens die stärkste Übereinstimmung mit Korrelationskoeffizienten der Monatsmittelwerte von über 0,95. Demzufolge können 43 % der Messwerte der Jahre 2011 - 2015 als repräsentativ für den großräumigen Hintergrund angesehen werden, während die restlichen 57 % regional beeinflusst sind. Die mittleren Tagesgänge vor und nach Anwendung der standortspezifisch besten Filtermethode mittels Radon zeigt Abbildung 2. Die charakteristisch verschobenen Tagesgänge aller CO2-Messwerte gegenüber den gefilterten unterstreichen zusammen mit den tagsüber in deutlich geringerer Anzahl auftretenden Hintergrundwerten die Funktionalität des Verfahrens.

Im Gegensatz zu den annähernd identischen Amplituden der  $CO_2$ -Konzentrationen der atmosphärischen Grenzschicht und des nordhemisphärischen Hintergrunds im Tagesgang zeigen sich bei den gefilterten Monatsmittelwerten Unterschiede in den Amplituden (s. Abb. 3). Die im Jahresmittel um durchschnittlich zwei ppm größere



Abb. 2: Mittlerer Tagesgang der CO<sub>2</sub>-Messungen der Jahre 2011 - 2015 am Schneefernerhaus vor und nach der Radon-basierten Filterung. Die blauen Säulen geben den prozentualen Anteil der Hintergrundwerte zu jedem Zeitintervall an.

Amplitude der  $CO_2$ -Konzentrationen regionalen Ursprungs kommt vor allem im Winter zustande, wenn der verstärkte Energiebedarf in der Heizperiode hohe  $CO_2$ -Emissionswerte verursacht. Das saisonale Sommerminimum, bedingt durch die  $CO_2$ -Assimilation der Vegetation, unterscheidet sich dagegen deutlich weniger von den Resultaten der Radon-Filterung, da zu dieser Jahreszeit der Energieverbrauch und somit die Emissionen geringer sind.

Einen weiteren Hinweis auf die Verbrennung fossiler Energieträger als Hauptverursacher der stetig ansteigenden  $CO_2$ -Konzentrationen auch im Einzugsgebiet der GAW-Station Zugspitze geben die Wachstumsraten der nach ihrer (über-)regionalen Herkunft getrennten  $CO_2$ -Messwerte. Gemittelt über den knapp fünfjährigen Untersuchungszeitraum weisen Messungen grenzschichtbeeinflusster Luftmassen eine 6 % stärkere Wachstumsrate verglichen mit dem Trend der freien Troposphäre auf (s. gestrichelte Linien in Abb. 3). Letzterer beläuft sich an Deutschlands höchstgelegener Messstation im Zeitraum 2011 - 2015 auf 1,86 ppm/Jahr, wohingegen die Kohlendioxidkonzentration regionaler Herkunft Jahr für Jahr im Mittel um 1,98 ppm zugenommen hat. Dieses Ergebnis, das exakt mit vergleichbaren Studien andernorts übereinstimmt (Tsutsumi et al. 2006), verdeutlicht einmal mehr, dass auch vor Ort Anstrengungen für Emissionsreduktionen zur Erreichung der Klimaschutzziele unerlässlich sind.



Abb. 3: CO<sub>2</sub>-Monatsmittel und -Wachstumsraten regional (un-)beeinflusster Luftmassen am Schneefernerhaus von Juni 2011 - Dezember 2015

#### Herkunftsanalyse mittels Trajektoriencluster

Detaillierte Einblicke in die Emissionssituation, die der Wachstumsrate des Einzugsgebietes der Zugspitze zugrunde liegt, können Trajektorien geben. Trajektorien aus der Dispersions- und Transportmodellierung haben sich als zuverlässiges Werkzeug zur Untersuchung dynamischer Prozesse in der Atmosphäre auf der synoptischen Skala etabliert. Auf der Grundlage von meteorologischen Feldern numerischer Wettervorhersagemodelle verfolgen sie die Bewegung eines Luftpakets in Raum und Zeit und lassen über die entstehenden Zugbahnen Strömungsmuster erkennen. Werden die Trajektorien ausgehend von einer Messstation rückwärts in der Zeit berechnet, geben sie Auskunft über die Transportwege und potentiellen Quellgebiete der detektierten Luftmassen. Mit Hilfe des Lagrange'schen Partikel-Dispersionsmodells FLEXPART (Stohl et al. 2005) werden am Startpunkt Schneefernerhaus alle zwei Stunden zehntausend Luftvolumina mit den spezifischen Tracereigenschaften des CO<sub>2</sub> entlassen und über zehn Tage hinweg rückverfolgt. Die zehntägigen Partikeltransportrechnungen bilden zusammen mit den zum jeweiligen Startzeitpunkt gemessenen CO<sub>2</sub>-Konzentrationen die Grundlage für die Herkunftsanalysen des Kohlendioxids an der Zugspitze.

Um derartige Dispersionsrechnungen nun aber für die Herkunftsanalyse von Luftmassen einsetzen zu können, müssen Unsicherheiten berücksichtigt werden, die beispielsweise durch die begrenzte Modellauflösung der meteorologischen Felder oder die Parametrisierungen des Partikelmodells zustande kommen. Deshalb werden die Rückwärtssimulationen der Partikeldispersion mittels Clusteranalysen und mit Hilfe der cost733class-Klassifikationssoftware (Philipp et al. 2016) auf den Pfad ihrer Zentroide zusammengefasst. Das bedeutet, dass wenige Zentroide die mittleren und damit am wenigsten fehlerbehafteten Hauptrouten des Partikeltransports abbilden. So können die Luftmassen der atmosphärischen Grenzschicht über dem Nordatlantik aussagekräftig in fünf Clustern zusammengefasst werden, deren Zentroidpfade Abbildung 4 in horizontaler (4 a) wie vertikaler (4 b) Erstreckung wiedergibt: Cluster 1 repräsentiert eine südwestliche und Cluster 5 eine nördliche Anströmrichtung zur Zugspitze. Cluster 2, 3 und 4 hingegen bilden Luftmassen aus nordwestlichen Richtungen ab (Abb. 4 a). In der Vertikalen (Abb. 4 b) lässt sich folgender Hauptunterschied ausmachen: während Cluster 3 und 4 Luftmassen darstellen, die aus der mittleren Troposphäre in über 3 km Höhe auf Zugspitzniveau absinken, zeigen Cluster 1 und 2 hingegen Luftmassen, die sich insgesamt näher an der Erdoberfläche bewegen. In beiden Clustern wird Luft zunächst aus der oberen Grenzschicht (ca. 2 km Höhe) zum Erdboden verdriftet, bevor sie zur Zugspitze angehoben wird.

Setzt man diese "fünf repräsentativen Transportwege" nun mit der CO<sub>2</sub>-Konzentration an der Zugspitze in Relation, ergibt sich folgendes in Abbildung 5 dargestelltes Bild. Cluster 1 und 2 sind mit erhöhten, Cluster 3 und 4 mit vergleichsweise niedrigen CO<sub>2</sub>-Konzentrationen auf der Zugspitze verknüpft. In Kombination mit den zuvor diskutierten horizontalen und vertikalen Eigenschaften der repräsentativen Transportwege können Luftmassen aus niedrigen Höhen erstens mehr bodennahe CO<sub>2</sub>-Emissionen aufnehmen, zweitens bleibt die CO<sub>2</sub>-Konzentra-



Abb. 4: Clusteranalyse fünftägiger Rückwärtstrajektorien grenzschichtbeeinflusster Luftmassen, die zwischen 2011 und 2015 an der GAW-Station Zugspitze/Schneefernerhaus eingetroffen sind, aus a) horizontaler und b) vertikaler Perspektive (relative Auftrittshäufigkeiten der jeweiligen Cluster im fünfjährigen Untersuchungszeitraum angegeben in Prozent)

tion durch die geringere vertikale Durchmischung hoch und führt letztendlich zu den hohen an der Zugspitze beobachteten Werten. Zusammenfassend lässt sich also sagen, dass Cluster 1 und 2 den lokalen Quelleneintrag bzw. den regional emittierten  $CO_2$ -Anteil wiedergeben und sich klar von den restlichen Clustern abgrenzen, die den ferntransportierten Anteil auf sich vereinigen. Die Cluster der Rückwärtstrajektorien einer Messstation mit den zeitgleich am Startpunkt aufgezeichneten  $CO_2$ -Werten in Bezug zu setzen, erlaubt eine erste qualitative Einordnung, ob sich Transportmuster konzentrationsmindernd oder -steigernd auf die Messergebnisse auswirken; einzelne Quellen und Senken des Treibhausgases können dabei aber nicht lokalisiert werden (Apadula et al. 2013).

#### Potentielle Quellbeitragsfunktion

Die Detektion geographischer Gebiete mit Einfluss auf die  $CO_2$ -Konzentrationen eines Standorts erfolgt über die potentielle Quellbeitragsfunktion (Potential Source Contribution Function, PSCF), die in bisherigen Studien zur Quellzuordnung von Spurengasen an der Untersuchungsstation Zugspitze als bestes statistisches Verfahren aus dem Vergleich unterschiedlicher Methoden hervorgegangen ist (Kaiser et al. 2007). Wie zuvor die Clusteranalyse verknüpft auch die PSCF die an der Messstation ankommenden Pfade atmosphärischer Luftmassen in Form von Rückwärtstrajektorien mit den zeitgleich gemessenen  $CO_2$ -Konzentrationen. In Erweiterung zur Clusterung der Rückwärtstrajektorien berücksichtigt die PSCF die Aufenthaltsdauer der Luftpakete über geographischen Regionen im Vorfeld ihrer Ankunft und Aufzeichnung

am Messstandort (Begum et al. 2005). Hierfür wird das Untersuchungsgebiet in Gitterzellen untergliedert, die entsprechend ihrer Beitragswahrscheinlichkeit zu trendund saisonbereinigten  $CO_2$ -Messwerten oberhalb eines Grenzwerts farbig codiert werden und schließlich in Gestalt einer Karte räumlich hochaufgelöst potentielle Emittenten verorten (Hopke et al. 1995).



Abb. 5: Gegenüberstellung der relativen Auftrittshäufigkeiten saison- und trendbereinigter  $CO_2$ -Konzentrationen (in Prozent), die zwischen 2011 - 2015 am Schneefernerhaus gemessen und via Cluster-Analyse den fünf Transportmustern aus Abb. 4 zugeordnet wurden.

Erhöhte Unsicherheiten der PSCF-Werte schwach frequentierter Gebiete werden mit Hilfe eines Korrekturfaktors berücksichtigt (nach Polissar et al. 1999). Damit fungiert die potentielle Quellbeitragsfunktion als zuverlässiger Indikator für die Wahrscheinlichkeit, dass eine bestimmte Region zu besonders hohen CO<sub>2</sub>-Messergebnissen an einem Rezeptor beiträgt (Pekney et al. 2006). Es gilt dabei die grundlegende Annahme, dass Trajektorien, die eine Gitterzelle mit Quellen passieren, die dortige Veränderung des atmosphärischen Schadstoffgehalts effektiv zum Rezeptor transportieren (Hopke 2003). Eine exemplarische PSCF-Karte zeigt Abbildung 6, die mit prozentualen Wahrscheinlichkeiten die für besonders hohe CO<sub>2</sub>-Konzentrationen (jenseits des 95. Perzentils) an der Zugspitze relevanten Gebiete aufzeigt. Deutlich erkennbar ist die Region mitteleuropäischer Braunkohlereviere (Lausitz, Most, Sokolov), die zwischen 2011 - 2015 folglich Hauptverursacher höchster CO<sub>2</sub>-Konzentrationen selbst an Deutschlands höchstgelegener Messstation auf über 2650 m Höhe sind.

#### Ausblick

Die im Rahmen der Modellgenauigkeit recht präzise Verortung der Braunkohlekraftwerke – den größten CO<sub>2</sub>-Emittenten im Einzugsgebiet der Messstation Zugspitze – in Abbildung 6 ist ein erster gewichtiger Beleg für die Funktionalität der inversen ,top-down'-Modellierung mit Hilfe von Trajektorien. Um die Verlässlichkeit des Verfahrens genauer einzuschätzen und die Modellgüte zu quantifizieren, sollen die Ergebnisse der vorgestellten Trajektorienanalysen mit Emissionskatastern verglichen werden.



Abb. 6: Potentielle Quellbeitragsfunktion (angegeben in prozentualer Wahrscheinlichkeit) derjenigen Trajektorien regionalen Ursprungs, die während des Untersuchungszeitraum 2011 - 2015 zu trend- und saisonalitätsbereinigten  $CO_2$ -Messwerten oberhalb des 95. Perzentils an der Messstation Schneefernerhaus geführt haben.

#### Literatur

- Apadula, F., Gotti, A., Pigini, A., Longhetto, A., Rocchetti, F., Cassardo, C., Ferrarese, S., Forza, R. (2003): Localization of source and sink regions of carbon dioxide through the method of the synoptic air trajectory statistics, *Atmospheric Environment* 37, S. 3757-3770.
- Begum, B. A., Kim, E., Jeong, C.-H., Lee, D.-W., Hopke, P. K. (2005): Evaluation of the potential source contribution function using the 2002 Quebec forest fire episode, *Atmospheric Environment* 39, S. 3719-3724.
- Chamber, S. D., Williams, A. G., Conen, F., Griffiths, A. D., Reimann, S., Steinbacher, M., Krummel, P. B., Steele, L. P., van der Schoot, M. V., Galbally, I. E., Molloy, S. B., Barnes, J. E. (2016): Towards a Universal "Baseline" Characterisation of Air Masses for Highand Low-Altitude Observing Stations Using Radon-222, *Aerosol Air Quality Research* 16, S. 885-899.
- Dlugokencky, E. J., Lang, P. M., Masarie, K. A., Crotwell, A. M., Crotwell, M. J. (2015): Atmospheric carbon dioxide dry air mole fractions from the NOAA ESRL Carbon Cycle Cooperative Global Air Sampling Network, 1968-2014, *ftp://aftp.cmdl.noaa.gov/data/ trace\_gases/co2/flask/surface/.*
- Fang, S. X., Tans, P. P., Steinbacher, M., Zhou, L. X., Luan, T. (2015): Study the regional CO<sub>2</sub> mole fractions filtering approach at a WMO/GAW regional station in China, *Atmospheric Measurement Techniques Discussion* 8, S. 7057-7091.
- Fang, S. X., Zhou, L. X., Tans, P. P., Ciais, P. Steinbacher, M., Xu, L., Luan, T. (2014): In situ measurements of atmospheric CO<sub>2</sub> at the four WMO/GAW stations in China, *Atmospheric Chemistry and Physics* 14, S. 2541-2554.

- Hopke, P. K. (2003): Recent developments in receptor modeling, *Journal of Chemometrics* 17, S. 255-265.
- Hopke, P. K., Li, C. L., Ciszek, W., Landsberger, S. (1995): The use of bootstrapping to estimate conditional probability fields for source locations of airborne pollutants, *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems* 30, S. 69-79.
- Kaiser, A., Scheifinger, H., Spangl, W., Weiss, A., Gilge, S., Fricke, W., Ries, L., Cemas, D., Jesenovec, B. (2007): Transport of nitrogen oxides, carbon monoxide and ozone to the Alpine Global Atmosphere Watch stations Jungfraujoch (Switzerland), Zugspitze and Hohenpeissenberg (Germany), Sonnblick (Austria) and Mt. Krvavec (Slovenia), *Atmospheric Environment* 41, S. 9273-9287.
- Pekney, N. J., Davidson, C. I., Zhou, L., Hopke, P. K. (2006): Application of PSCF and CPF to PMF-Modeled Sources of PM 2.5 in Pittsburgh, *Aerosol Science and Technology* 40, S. 952-961.
- Philipp, A., Beck, C., Huth, R., Jacobeit, J. (2016): Development and comparison of circulation type classifications using the COST733 dataset and software, *International Journal of Climatology* 36, S. 2673-2691.
- Polissar, A. V., Hopke, P. K., Paatero, P., Kaufmann, Y. J., Hall, D. K., Bodhaine, B. A., Dutton, E. G., Harris, J. M. (1999): The aerosol at Barrow, Alaska long-term trends and source locations, *Atmospheric Environment* 33, S. 2441-2458.
- Ruckstuhl, A. F., Henne, S., Reimann, S., Steinbacher, M., Vollmer, M. K., O'Doherty, S., Buchmann, B., Hueglin, C. (2012): Robust extraction of baseline signal of atmospheric trace species using local regression, *Atmospheric Measurement Techniques* 5, S. 2613-2614.

- Stohl, A., Forster, C., Frank, A., Seibert, P., Wotawa, G. (2005): Technical note The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 6.2, *Atmospheric Chemistry and Physics* 5, S. 2461-2474.
- Tsutsumi, Y., Mori, K., Ikegami M., Tashiro T., Tsuboi K. (2006): Long-term trends of greenhouse gases in regional and background events observed during 1998-2004 at Yonagunijima located to the east of the Asian continent, *Atmospheric Environment* 40, S. 2868-5879.
- Zellweger, C., Forrer, J., Hofer, P., Nyeki, S., Schwarzenbach, B., Weingartner, E., Ammann, M., Baltensperger, U. (2003): Partitioning of reactive nitrogen (NO<sub>y</sub>) and dependence on meteorological conditions in the lower free troposphere, *Atmospheric Chemistry and Physics* 3, S. 779-796.