

Haushaltsuntersuchungen der im Alpenraum
gemessenen Klimagase CO₂ und CH₄

Dissertation zur Erlangung des
naturwissenschaftlichen Doktorgrades
der Fakultät für Angewandte Informatik
der Universität Augsburg

vorgelegt von
Esther Maria Giemsa

Augsburg 2020

Erstgutachter:

Prof. Dr. Jucundus Jacobeit

Zweitgutachter:

PD Dr. Christoph Beck

Tag der mündlichen Prüfung:

30. Juli 2021

"Gott vergibt immer,
Menschen manchmal,
die Natur nie.
Wir müssen uns um die Natur kümmern,
damit sie nicht mit Zerstörung antwortet."

Papst Franziskus

Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis	iii
Tabellenverzeichnis	viii
Abkürzungsverzeichnis	ix
Kurzbeschreibung	1
Abstract	2
1 Motivation	3
2 Konzeption und Ziele	5
3 Untersuchungsgebiet und Datengrundlage	8
4 Methodik	11
4.1 Thematische Aufbereitung der Klimagaszeitreihen	11
4.1.1 Filterverfahren zur Separierung der Luftmassen entsprechend ihrer (über-)regionalen Zugehörigkeit	11
4.1.2 Saisonalitäts- und Trendbereinigung	15
4.2 Trajektorienbasierte Untersuchungen zur Quellherkunft von Klimagasen	16
4.2.1 Rekonstruktion der synoptischen Transportbahnen als Basis der Herkunftsanalysen	16
4.2.1.1 Lagrange'sches Partikeldispersionsmodell FLEXPART	16
4.2.1.2 Zentroidpfade der rückwärts in der Zeit gerichteten Partikeldispersionsmodellierung	19
4.2.2 Trajektoriencluster	21
4.2.3 Konzentrationsgewichtete Trajektorienfelder	26
5 Ergebnisse	28
5.1 CO ₂ -Haushaltsuntersuchungen für die Messungen am Schneefernerhaus	28
5.1.1 Identifikation des standortspezifisch besten Filterverfahrens .	28
5.1.2 Herkunftsanalysen mittels Trajektorienclustern	32
5.1.3 Detektion geographischer Gebiete mit Einfluss auf die CO ₂ - Konzentrationen anhand konzentrationsgewichteter Trajekto- rienfelder	41
5.1.3.1 Analyse des gesamten Untersuchungszeitraums . . .	42
5.1.3.2 Saisonale Analysen	43

5.1.3.3	Einzeljahres-Analysen	45
5.2	Einflüsse von Quellen und Senken auf die alpinen CO ₂ -Konzentrationen 2011–2015	46
5.2.1	Analyse des gesamten Untersuchungszeitraums	50
5.2.2	Saisonale Analysen	53
5.2.3	Einzeljahres-Analysen	56
5.3	Einflüsse von Quellen und Senken auf die alpinen CH ₄ -Konzentrationen 2011–2015	58
5.3.1	Analyse des gesamten Untersuchungszeitraums	61
5.3.2	Saisonale Analysen	63
5.3.3	Einzeljahres-Analysen	67
6	Unsicherheitsabschätzung und Plausibilitätsprüfung	68
6.1	Aussagekraft der Resultate in Abhängigkeit von Footprint und Grenz- schichtkontakt	68
6.2	Plausibilitätsprüfung anhand der Vergleiche mit Ergebnissen inverser Modellierung	70
6.2.1	Invers modellierte Klimagasflüsse des Copernicus Atmosphere Monitoring Service	71
6.2.1.1	CO ₂ -Flüsse	71
6.2.1.2	CH ₄ -Flüsse	73
6.2.2	CO ₂ -Konzentrationsfelder des Jena CarboScope Projekts	75
7	Synthese und Ausblick	81
	Zusammenfassung	83
	Summary	97
	Danksagung	110
	Literaturverzeichnis	112

Abbildungsverzeichnis

1.1	Monats- und Jahresmittelwerte der CO ₂ -Konzentration gemessen an der Umweltforschungsstation Schneefernerhaus	3
2.1	Schematische Darstellung des Konzeptes für die Haushaltsuntersuchungen der im Alpenraum gemessenen Klimagase CO ₂ und CH ₄	6
3.1	Karte der vier Observatorien für die messreihenbasierten CO ₂ - und CH ₄ -Haushaltsbilanzierungen des Alpenraums	10
4.1	Saisonalitäts- und Trendbereinigung der CO ₂ -Messwerte der Umweltforschungsstation Schneefernerhaus 2000–2015 basierend auf dem Verfahren nach Cleveland et al. (1990)	15
4.2	Exemplarische FLEXPART-Partikeldispersionsrechnung inkl. dem Pfad der Zentroide entsprechend den mittleren Transportpositionen der Partikelrückverfolgung	18
4.3	Footprints der Zentroidpfade aus den FLEXPART Partikeldispersionsimulationen für die Stationen Jungfraujoch, Plateau Rosa, Sonnblick und Schneefernerhaus entsprechend der Frequentierung der 0.2° x 0.2° Gitterzellen im jeweiligen Einzugsgebiet durch die Rückwärtstrajektorien über den Untersuchungszeitraum 2011–2015	20
4.4	Gemeinsamer Footprint der Zentroidpfade aus den FLEXPART Partikeldispersionsimulationen für die Stationen Jungfraujoch, Plateau Rosa, Sonnblick und Schneefernerhaus entsprechend der Frequentierung der 0.2° x 0.2° Gitterzellen im kombinierten Einzugsgebiet durch die Rückwärtstrajektorien über den Untersuchungszeitraum 2011–2015	20
4.5	Zentroidpfade (der ersten 12 Stunden) der k-means Clusteranalyse der Rückwärtstrajektorien aus der FLEXPART Partikeldispersionsmodellierung, die die Luftmassenherkunft zwischen 2000 und 2015 an der GAW-Globalstation Zugspitze/Schneefernerhaus rückverfolgen	24
4.6	Tages- und Jahresgang der um Saisonalität und Trend bereinigten mittleren CO ₂ -Konzentrationen, die zwischen 2000 und 2015 an der GAW-Globalstation Zugspitze/Schneefernerhaus gemessen und den Clustern aus Abb. 4.5 zugeordnet wurden	25
5.1	Vergleich der Mediane der monatlichen CO ₂ -Hintergrundkonzentrationen verschiedener Filtermethoden mit den NOAA-Referenzwerten der marinen Grenzschicht	29

5.2	Radon-Zeitreihe der GAW-Station Schneefernerhaus inkl. der dunkelblau eingefärbten Konzentrationen, die gemäß dem Radon-Filterverfahren als repräsentativ für die freie Troposphäre angesehen werden können	30
5.3	Mittlerer Tagesgang der CO ₂ -Messungen der Jahre 2011–2015 am Schneefernerhaus vor und nach der radonbasierten Filterung	31
5.4	CO ₂ -Monatsmittelwerte und -Wachstumsraten regional (un-)beeinflusster Luftmassen am Schneefernerhaus von Juni 2011 bis Dezember 2015 .	31
5.5	Resultat der Clusteranalyse fünftägiger Rückwärtstrajektorien grenzschichtbeeinflusster Luftmassen, die zwischen 2011 und 2015 an der GAW-Station Zugspitze/Schneefernerhaus eingetroffen sind, aus horizontaler und vertikaler Perspektive	34
5.6	Gegenüberstellung der relativen Auftrittshäufigkeiten saison- und trendbereinigter CO ₂ -Konzentrationen, die zwischen 2011–2015 am Schneefernerhaus gemessen und via Cluster-Analyse den fünf Transportmustern aus Abb. 5.5 zugeordnet wurden	35
5.7	Resultat der Clusteranalyse achttägiger Rückwärtstrajektorien überregional repräsentativer Luftmassen, die zwischen 2011 und 2015 an der GAW-Station Zugspitze/Schneefernerhaus eingetroffen sind, aus horizontaler und vertikaler Perspektive	36
5.8	Gegenüberstellung der relativen Auftrittshäufigkeiten saison- und trendbereinigter CO ₂ -Konzentrationen, die zwischen 2011–2015 am Schneefernerhaus gemessen und via Cluster-Analyse den drei Transportmustern aus Abb. 5.7 zugeordnet wurden	37
5.9	Tages- und Jahresgang des clusterspezifischen Einflusses auf die mittleren saison- und trendbereinigten CO ₂ -Konzentrationen, die zwischen 2011–2015 am Schneefernerhaus gemessen und via Cluster-Analyse den Transportmustern aus Abb. 5.5 und 5.7 zugeordnet wurden . . .	38
5.10	Tages- und Jahresgang des clusterspezifischen Einflusses auf die maximalen saison- und trendbereinigten CO ₂ -Konzentrationen, die zwischen 2011–2015 am Schneefernerhaus gemessen und via Cluster-Analyse den Transportmustern aus Abb. 5.5 und 5.7 zugeordnet wurden . . .	39
5.11	Herkunftssektoren nach Windrichtung und Jahresgang des clusterspezifischen Einflusses auf die mittleren saison- und trendbereinigten CO ₂ -Konzentrationen, die zwischen 2011–2015 am Schneefernerhaus gemessen und via Cluster-Analyse den Transportmustern aus 5.5 und 5.7 zugeordnet wurden	40

5.12	Beiträge aus den farbig codierten Gitterzellen zu den saison- und trendbereinigten CO ₂ -Konzentrationen, die während des Untersuchungszeitraums 2000–2015 an der Station Schneefernerhaus gemessen wurden	43
5.13	Jahreszeitlich differenzierte Beiträge aus den farbig codierten Gitterzellen zu den saison- und trendbereinigten CO ₂ -Konzentrationen, die während des Untersuchungszeitraums 2000–2015 an der Station Schneefernerhaus gemessen wurden	44
5.14	Jährliche Beiträge aus den farbig codierten Gitterzellen zu den saison- und trendbereinigten CO ₂ -Konzentrationen, die während des Untersuchungszeitraums 2000–2015 an der Station Schneefernerhaus gemessen wurden	45
5.15	Beiträge aus den farbig codierten Gitterzellen zu den saison- und trendbereinigten CO ₂ -Konzentrationen, die während des Untersuchungszeitraums 2011–2015 an der Station Schneefernerhaus gemessen wurden	47
5.16	Monatlicher Verlauf der Tagesgänge der mittleren saison- und trendbereinigten CO ₂ -Konzentrationen, die 2011–2015 an den vier hochalpinen Observatorien Jungfrauoch, Plateau Rosa, Sonnblick und Schneefernerhaus gemessen wurden	49
5.17	Beiträge aus den farbig codierten Gitterzellen zu den saison- und trendbereinigten CO ₂ -Konzentrationen, die während des Untersuchungszeitraums 2011–2015 an den Stationen Jungfrauoch, Plateau Rosa, Sonnblick bzw. Schneefernerhaus gemessen wurden	51
5.18	Beiträge aus den farbig codierten Gitterzellen zu den saison- und trendbereinigten CO ₂ -Konzentrationen, die während des Untersuchungszeitraums 2011–2015 an den hochalpinen Stationen Jungfrauoch, Plateau Rosa, Sonnblick und Schneefernerhaus gemessen wurden	52
5.19	Nach Jahreszeiten und Stationen differenzierte Beiträge aus den farbig codierten Gitterzellen zu den saison- und trendbereinigten CO ₂ -Konzentrationen, die während des Untersuchungszeitraums 2011–2015 an den Stationen Jungfrauoch, Plateau Rosa, Sonnblick bzw. Schneefernerhaus gemessen wurden	53
5.20	Jahreszeitliche Beiträge aus den farbig codierten Gitterzellen zu den saison- und trendbereinigten CO ₂ -Konzentrationen, die während des Untersuchungszeitraums 2011–2015 an den Stationen Jungfrauoch, Plateau Rosa, Sonnblick und Schneefernerhaus gemessen wurden	55

5.21	Jährliche Beiträge aus den farbig codierten Gitterzellen zu den saison- und trendbereinigten CO ₂ -Konzentrationen, die während des Untersuchungszeitraums 2011–2015 an den Stationen Jungfraujoch, Plateau Rosa, Sonnblick und Schneefernerhaus gemessen wurden	57
5.22	Normalisierte saisonale Anomalien der beiden Klimagase CO ₂ und CH ₄ gemessen von 2011–2015 an der Umweltforschungsstation Schneefernerhaus	58
5.23	Monatlicher Verlauf der Tagesgänge der mittleren saison- und trendbereinigten CH ₄ -Konzentrationen, die 2011–2015 an den vier hochalpinen Observatorien Jungfraujoch, Plateau Rosa, Sonnblick und Schneefernerhaus gemessen wurden	60
5.24	Beiträge aus den farbig codierten Gitterzellen zu den saison- und trendbereinigten CH ₄ -Konzentrationen, die während des Untersuchungszeitraums 2011–2015 an den Stationen Jungfraujoch, Plateau Rosa, Sonnblick bzw. Schneefernerhaus gemessen wurden	61
5.25	Beiträge aus den farbig codierten Gitterzellen zu den saison- und trendbereinigten CH ₄ -Konzentrationen, die während des Untersuchungszeitraums 2011–2015 an den hochalpinen Stationen Jungfraujoch, Plateau Rosa, Sonnblick und Schneefernerhaus gemessen wurden	63
5.26	Nach Jahreszeiten und Stationen differenzierte Beiträge aus den farbig codierten Gitterzellen zu den saison- und trendbereinigten CH ₄ -Konzentrationen, die während des Untersuchungszeitraums 2011–2015 an den Stationen Jungfraujoch, Plateau Rosa, Sonnblick bzw. Schneefernerhaus gemessen wurden	64
5.27	Jahreszeitliche Beiträge aus den farbig codierten Gitterzellen zu den saison- und trendbereinigten CH ₄ -Konzentrationen, die während des Untersuchungszeitraums 2011–2015 an den Stationen Jungfraujoch, Plateau Rosa, Sonnblick und Schneefernerhaus gemessen wurden	66
5.28	Jährliche Beiträge aus den farbig codierten Gitterzellen zu den saison- und trendbereinigten CH ₄ -Konzentrationen, die während des Untersuchungszeitraums 2011–2015 an den Stationen Jungfraujoch, Plateau Rosa, Sonnblick und Schneefernerhaus gemessen wurden	67
6.1	Mittlerer prozentualer Kontakt der Zentroidpfade aus der FLEXPART-Partikeldispersionsmodellierung ausgehend von den Stationen Jungfraujoch, Plateau Rosa, Sonnblick und Schneefernerhaus mit der bodennahen Grenzschicht während des Untersuchungszeitraums der Jahre 2011–2015	70

6.2	Mittlere CAMS CO ₂ -Oberflächenflüsse der fossilen Emissionen sowie der Biosphäre (posterior) der Jahre 2011–2015 über Mitteleuropa saisonal aggregiert	72
6.3	Mittlere CAMS Gesamtmethan-Oberflächenflüsse der Jahre 2011–2015 über Mitteleuropa saisonal aggregiert	74
6.4	Saisonal aggregierte globale CO ₂ -Konzentrationen des Jena CarboScope Projekts (Version s04_v4.1) auf Höhe des Normdrucks von 1013 hPa für das exemplarische Jahr 2011	76
6.5	Jahresweise aggregierte mittlere CO ₂ -Konzentrationen des Jena CarboScope Projekts (Version s04_v4.1) auf Höhe des Normdrucks von 1013 hPa über Mitteleuropa für die Jahre 2011–2015	78
6.6	Jahreszeitlich aggregierte mittlere CO ₂ -Konzentrationen des Jena CarboScope Projekts (Version s04_v4.1) auf Höhe des Normdrucks von 1013 hPa über Mitteleuropa für das exemplarische Jahr 2011	79

Tabellenverzeichnis

3.1	Übersicht der vier hochalpinen Observatorien, deren Klimagasmessreihen die Datenbasis für die Charakterisierung des CO ₂ - und CH ₄ -Haushalts des Alpenraums bilden	9
3.2	Übersicht der Instrumente zur CO ₂ - bzw. CH ₄ -Messung an den vier hochalpinen Observatorien	9

Abkürzungsverzeichnis

CA	Clusteranalyse (statistisches Klassifikationsverfahren)
CAMS	Copernicus Atmosphere Monitoring Service (Kopernikus-Atmosphärenüberwachungsdienst des Europäischen Zentrums für mittelfristige Wettervorhersage)
CH ₄	Methan (methane)
CO ₂	Kohlendioxid (carbon dioxide)
CRDS	Cavity Ring-Down Spectroscopy (Absorptionsspektroskopie mittels optischer Resonatoren)
CWT	Konzentrationsgewichtete Trajektorienfelder (concentration weighted trajectory fields)
ECMWF	European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (Europäisches Zentrum für mittelfristige Wettervorhersage)
FLEXPART	Lagrange'sches Partikel-Dispersionsmodell (FLEXible PARTicle dispersion model) (Stohl et al. 2005)
GAW	Global Atmosphere Watch (internationales Atmosphärenbeobachtungsprogramm)
GC-FID	Gaschromatographie mit Flammenionisationsdetektor
GFS	Global Forecast System (globales numerisches Wettervorhersagemodell des nationalen Wetterdienstes der Vereinigten Staaten)
hPa	HektoPascal (Abkürzung der Maßeinheit des Luftdrucks)
ICOS-ATC	Integrated Carbon Observation System – Atmospheric Thematic Centre (Integriertes Kohlenstoffbeobachtungssystem – Thematisches Zentrum Atmosphäre)
IPCC	Intergovernmental Panel on Climate Change (Weltklimarat)
JFJ	Observatorium Jungfrauojoch (Schweiz)
LRZ	Leibniz-Rechenzentrum (in Garching bei München)
NCEP	National Centers for Environmental Prediction (Nationale Zentren für Umweltprognosen der NOAA)
NDIR	Non-Dispersive InfraRed Analysis (nichtdispersive Infrarotmesstechnik zur Bestimmung der CO ₂ -Konzentration in spektroskopischen Gassensoren)
NetCDF	Network Common Data Format (binäres maschinenunabhängiges Dateiformat zum Austausch wissenschaftlicher Daten)

NOAA	National Oceanic and Atmospheric Administration (Nationale Ozean- und Atmosphärenbehörde der Vereinigten Staaten)
ppb	parts per billion (Teile pro Milliarde), Maßeinheit der Methankonzentration
ppm	parts per million (Teile pro Million), Maßeinheit der Kohlendioxidkonzentration
PRO	Observatorium Plateau Rosa (Italien)
RAMCES	Reseau Atmospherique de Mesure des Composes a Effet de Serre database (Datenbank des Netzwerks atmosphärischer Messungen von Treibhausgasverbindungen)
SCIAMACHY	Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmospheric Chartography (Instrument des europ. Umweltsatelliten Envisat)
SON	Observatorium Sonnblick (Österreich)
UFS	Umweltforschungsstation Schneefernerhaus (Deutschland)
WDCGG	World Data Centre for Greenhouse Gases (Weltdatenzentrum für Klimagase)
WMO	World Meteorological Organization (Weltmeteorologieorganisation der Vereinten Nationen)

Kurzbeschreibung

Die vorliegende Arbeit gibt mittels herkunftsbezogener Untersuchungen des alpinen Kohlendioxid (CO_2)- und Methan (CH_4)-Haushalts detaillierte Einblicke in die den Messreihen zugrunde liegenden Emissionsstrukturen. Die Grundlage für die Charakterisierung des regionalen CO_2 - sowie CH_4 -Haushalts des Alpenraums als Kerngebiet der mitteleuropäischen Untersuchungsregion bilden die atmosphärischen Messreihen der beiden Klimagase an den vier hochalpinen Standorten Schneefernerhaus, Jungfrauoch, Sonnblick und Plateau Rosa. Für die so aufgespannte Untersuchungsregion identifiziert diese Arbeit die Quellen- und Senkenregionen mit Einfluss auf die alpinen Klimagasmessungen sowie deren zeitliche Variationen. Die dafür notwendige Verknüpfung der Messwerte mit der zum jeweiligen Messzeitpunkt vorherrschenden synoptischen Situation, die Auskunft über die Quellherkunft der detektierten Luft gibt, geschieht mit Hilfe eines trajektorienbasierten Rezeptormodells. Die damit erzielten, schlüssigen Resultate heben in Verbindung mit den positiven Ergebnissen der modellinternen Unsicherheitsabschätzungen und externen Plausibilitätsprüfungen die Modellgüte des Ansatzes hervor und unterstreichen insbesondere die Stärke des Modells, raumzeitliche Variationen der relevanten Emittenten und Absorber unterschiedlicher Klimagase (CO_2 und CH_4) in hoher räumlicher Auflösung verlässlich abzubilden.

Abstract

This work gives detailed insights into the measurement time series underlying emission structures by means of origin-related examinations of the Alpine carbon dioxide (CO_2) and methane (CH_4) budget. The time series of both climate gases from the atmospheric measurements carried out at the four high-alpine observatories Schneefernerhaus, Jungfraujoch, Sonnblick and Plateau Rosa form the basis for the characterisation of regional CO_2 as well as CH_4 budget of the Alpine region as the focus area of the Central European study region. For the investigation area so outlined, the work identifies the source and sink regions with influence on the Alpine climate gas measurement as well as their temporal variations. The required combination of the measurements with the synoptic situation prevailing at the respective measuring time which gives the information about the origin of the analysed air masses is therefore derived by means of a trajectory based receptor model. The conclusive results achieved with this approach emphasise in connection with the positive results of the model-internal uncertainty assessments and external plausibility checks the validity of the model and underline in particular the strength of the model to illustrate dependably spatial-temporal variations of the relevant emitters and absorbers of different climate gases (CO_2 and CH_4) in high spatial resolution.

1 Motivation

Kohlendioxid (CO_2) und Methan (CH_4) sind nicht nur die prominentesten, sondern mit einer kumulierten Erhöhung des global gemittelten Strahlungsantriebs von derzeit $2,65$ ($\pm 0,58$) W/m^2 auch die beitragsstärksten anthropogen induzierten Klimagase (IPCC 2013). Damit gelten sie als die Hauptverursacher der globalen Erwärmung, die seit Beginn der Industrialisierung ab dem Jahr 1750 den natürlichen Treibhauseffekt intensiviert. Der ungebrochene Anstieg der atmosphärischen Konzentrationen dieser beiden Treibhausgase gegenüber ihrem vorindustriellen Level (CO_2 um 40 %, CH_4 um 150 %, IPCC 2013) ist zweifelsfrei auf anthropogene Emissionen, insbesondere die Verbrennung fossiler Brennstoffe und Landnutzungsänderungen, zurückzuführen und überlagert den saisonalen Kohlenstoff-Zyklus der Biosphäre sowie natürliche biogeochemische Kreisläufe (Keeling 1993). Abbildung 1.1 zeigt diese Interferenz der stetig steigenden atmosphärischen CO_2 -Konzentrationen und des überlagernden Effekts des saisonalen Kohlenstoffkreislaufs der Biosphäre anhand der CO_2 -Monats- und Jahresmittelwerte der exemplarischen Messtation auf der Umweltforschungsstation Schneefernerhaus sehr anschaulich.

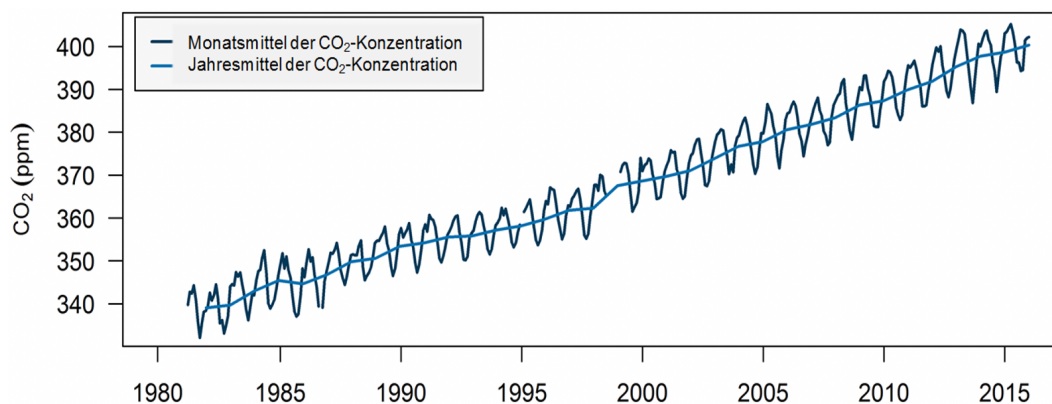


Abb. 1.1: Monats- und Jahresmittelwerte (in ppm) der CO_2 -Konzentration gemessen an der Umweltforschungsstation Schneefernerhaus (seit 2002 – zuvor am Zugspitzgipfel)
Quelle: Eigene Darstellung

Dieses Zusammenspiel von Mensch und Biosphäre als Emittenten bzw. Absorber in Verbindung mit der langen atmosphärischen Verweilzeit – insbesondere des CO_2 von mehreren hundert Jahren (IPCC 2018) – verhindert, dass atmosphärische Messzeitreihen der Klimagase unmittelbar Auskunft über Änderungen der regionalen Emissionssituation geben können. Nicht nur aus wissenschaftlicher Sicht, sondern auch aufgrund des gestiegenen Interesses aus Politik und Gesellschaft an dieser Thematik, ist ergänzend zu den Klimagaszeitreihen auch deren Interpretation mit be-

sonderem Augenmerk auf den regionalen Emissionshaushalt im Einzugsgebiet einer Messstation von hoher Relevanz. Denn erst die Kenntnis über regionale Emissionsstrukturen ermöglicht ein fundiertes Verständnis des regionalen Klimagashaushalts und damit die Abschätzung sich ändernder Quellbeiträge im Einzugsgebiet der Messstation. Dies bietet der Umweltpolitik schließlich die Grundlage zu gezielter regionaler Steuerung.

Um aus den hochpräzisen Messzeitreihen der Klimagase diese Größen klimapolitischer Dimension abzuleiten, auf deren Basis effiziente Emissionsminderungsmaßnahmen verifiziert und gegebenenfalls angepasst werden können, bedarf es einer differenzierten Aufschlüsselung der Messwerte nach ihrer Herkunft. Mittels herkunftsbezogener Analyseverfahren können Klimagaszeitreihen entsprechend ihres (über-) regionalen Beitrags gefiltert sowie in Verbindung mit der Kenntnis über die zum jeweiligen Zeitpunkt der Messungen vorherrschenden synoptischen Witterungssituationen Rückschlüsse auf ihre Quellherkunft ermöglichen. Die vorliegende Arbeit möchte derartige Verfahren auf eine exemplarische Messstation anwenden und anschließend basierend auf diesen Resultaten eine erfolgsversprechende Methodik entwickeln, die die Emissionsstrukturen des Klimagashaushalts einer Untersuchungsregion sowie deren zeitliche Varianz abbildet. Damit soll für die zur Einhaltung der Ziele des Pariser Klimaabkommens (Vereinte Nationen 2016) dringend notwendigen Reduktionen der Treibhausgasemissionen ein Verfahren erprobt werden, das auf Basis der Messreihen Auskünfte über den regionalen Klimagashaushalt und dessen Quellbeiträge im Einzugsgebiet gibt, sodass sowohl die Wirkung von umgesetzten Emissionsminderungsmaßnahmen als auch noch zu eliminierende Emissions-Hotspots aufgezeigt werden können.

2 Konzeption und Ziele

Übergeordnetes Ziel dieser Arbeit ist es, mittels herkunftsbezogener Untersuchungen des Kohlendioxid- und Methanhaushalts einer Region detaillierte Einblicke in die den Messreihen zugrunde liegenden Emissionsstrukturen zu geben. Damit soll die eingangs erläuterte Notwendigkeit eines fundierten Verständnisses des Klimagashaushalts einer Region mit all seinen zeitlich variablen Quellen und Senken als Voraussetzung für wirkungsvolle Maßnahmen zur Erreichung der Reduktionsziele des Pariser Klimaabkommens (Vereinte Nationen 2016) verfolgt werden (s. Kapitel 1). Die Interferenz der anthropogenen Emissionen mit dem saisonalen Kohlenstoff-Zyklus der Biosphäre und den natürlichen biogeochemischen Kreisläufen sowie die lange atmosphärische Verweilzeit – insbesondere von CO_2 – erschweren die Ableitung dieser für effiziente Emissionsminderungsmaßnahmen essenziellen Informationen aus den Klimagaszeitreihen maßgeblich.

Um dennoch möglichst aussagekräftige Charakterisierungen des Klimagashaushalts einer Messstation bzw. einer Region zu erlangen, ist die Auswahl des Untersuchungsgebietes von großer Relevanz. Besonders geeignet für Quellherkunftsanalysen von Klimagasen sind hochgelegene Messstandorte hoher Repräsentativität fernab lokaler Emissionsquellen. Diese Voraussetzungen erfüllen in Mitteleuropa insbesondere die Observatorien im alpinen Hochgebirge, da sie aufgrund ihrer exponierten Lage den Zustand der unteren freien Troposphäre ebenso erfassen wie den Ferntransport von Luftmassen und Luftbeimengungen. Folglich basieren die hier vorgestellten Untersuchungen des CO_2 - und CH_4 -Haushalts auf den Messreihen vier hochalpiner Messstationen, die eine möglichst weitreichende Abdeckung des Alpenraums gewährleisten und im folgenden Kapitel näher vorgestellt werden.

Die Verknüpfung der an diesen Stationen gemessenen Klimagaskonzentrationen mit der zum jeweiligen Messzeitpunkt vorherrschenden synoptischen Situation, die Auskunft über die Quellherkunft der erfassten Luft gibt, geschieht mit Hilfe trajektorienbasierter Analyseverfahren. Hierbei sind insbesondere Trajektoriencluster sowie sogenannte konzentrationsgewichtete Trajektorienfelder (concentration weighted trajectory fields, CWT) vielversprechende Untersuchungsmethoden. Die Methodik der Kalkulation von Trajektorienclustern wird ebenso wie die CWT-Berechnung gemeinsam mit den zuvor nötigen Arbeitsschritten der Filterung der Klimagaszeitreihen in Kapitel vier erläutert.

Aufbauend auf der Kenntnis der methodischen Herangehensweise widmet sich das fünfte Kapitel ausführlich den Resultaten der CO_2 - und CH_4 -Haushaltsuntersuchungen. Dabei wird der entwickelte Ansatz von der thematischen Aufbereitung bis zu

den CWT-Karten zunächst exemplarisch für die Kohlendioxidkonzentrationen der Umweltforschungsstation Schneefernerhaus aufgezeigt. Anschließend wird die Untersuchung des Einflusses von Quellen und Senken mittels konzentrationsgewichteter Trajektorienfelder auf die CO_2 - und CH_4 -Messungen des gesamten Alpenraums (repräsentiert durch vier hochalpine Messstationen, die entlang des Alpenhauptkamms verortet sind) ausgeweitet (s. Abb. 2.1).

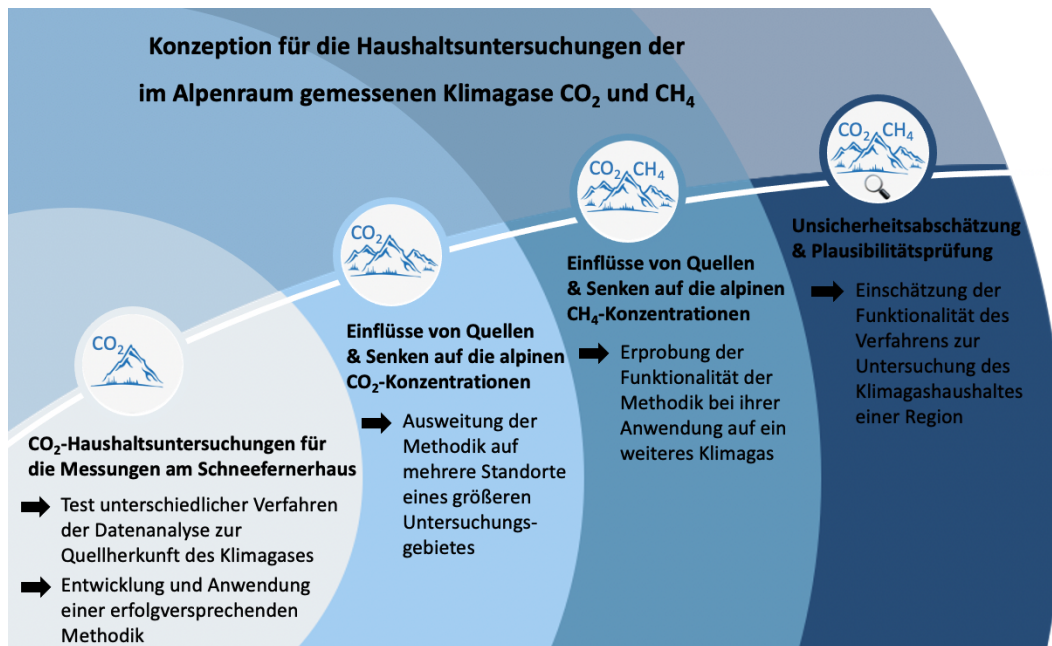


Abb. 2.1: Schematische Darstellung des Konzeptes für die Haushaltsuntersuchungen der im Alpenraum gemessenen Klimagase CO_2 und CH_4
Quelle: Eigene Darstellung

In der darauffolgenden Quantifizierung der mit der Methodik einhergehenden Unsicherheiten sowie einer Plausibilitätsprüfung anhand des Vergleichs mit anderen Modellergebnissen der Klimagasflüsse bzw. -konzentrationen wird im sechsten Kapitel die Aussagekraft ebenso wie deren Einschränkungen beleuchtet. Abschließend finden sich im siebten Kapitel die daraus resultierenden Schlussfolgerungen zusammen mit einem Ausblick bevor in einer Zusammenfassung in deutscher sowie in englischer Sprache die wichtigsten Eckpunkte der zentralen Kapitel der Arbeit nochmals kompakt aufgeführt werden.

Die Forschungsarbeiten, die der so gegliederten Dissertation zugrunde liegen, sind im Rahmen zweier Projektförderungen entstanden. Der erste Teil der Untersuchungen wurde in einem Teilprojekt zu Trends klimawirksamer Gase, das im Kontext des Verbundprojekts 'Virtuelles Alpenobservatorium' durch das Bayerische Umweltministerium gefördert wurde, erzielt (Förderkennzeichen VAO II, TP I/02, 711d-U8729-2013/193). Fördermittelgeber darauf aufbauender Analysen war das Umweltbundes-

amt im Zuge des Umweltforschungsplanprojekts 'Betrachtung des regionalen CO₂-Haushalts auf Basis atmosphärischer Messreihen' (Förderkennzeichen 3716512040) (Giemsa & Jacobeit 2018). Neben der Veröffentlichung von Teilergebnissen der Arbeit in den Schlussberichten der genannten Projekte wurden einzelne Resultate bereits 2019 in der Zeitschrift *Environmental Sciences Europe* unter dem Titel 'Investigating regional source and sink patterns of Alpine CO₂ and CH₄ concentrations based on a back trajectory receptor model' publiziert (Giemsa et al. 2019). Daneben sind Zwischenergebnisse der hier zusammenfassend vorgestellten Forschungsarbeit seit 2015 kontinuierlich in Jahresberichten (u.a. des Wissenschaftszentrums Umwelt der Universität Augsburg und der Umweltforschungsstation Schneefernerhaus) sowie auf internationalen Konferenzen (u.a. der General Assembly der European Geosciences Union, des Arbeitskreises Klima und des Virtuellen Netzwerks der Alpenobservatorien) veröffentlicht und präsentiert worden. Zur Wahrung des Leseflusses wird hierauf in den einzelnen (Unter-)Kapiteln nicht mehr separat verwiesen.

Der skizzierte Aufbau von der Charakterisierung der Untersuchungsregion über das methodische Konzept und dessen Resultate in der Anwendung bis hin zur Quantifizierung von Unsicherheiten und Plausibilität der Ergebnisse und schließlich der finalen Zusammenschau aller vorangegangenen Kapitel soll der Beantwortung der folgenden Fragen dienen, die gleichsam die wichtigsten Kernziele der Arbeit umreißen:

- Kann die angewandte messreihenbasierte Methodik plausibel und zuverlässig den CO₂- sowie CH₄-Haushalt des Alpenraums charakterisieren?
- Welche klimagasspezifischen Quell- und Senkenregionen mit Einfluss auf die Messungen an den alpinen Receptorobservatorien werden vom Modell identifiziert und zeigen diese saisonale oder annuelle Variationen?
- Welche Voraussetzungen müssen für eine erfolgreiche Anwendung des Modells zur Identifikation potentieller Emissions-Hotspots und relativer Senkenregionen erfüllt sein?
- Welche Übereinstimmungen bzw. Unterschiede sowie Stärken/Schwächen des Modells zeigen sich im Vergleich der Resultate mit Ergebnissen aus der inversen Modellierung von Klimagasflüssen und -konzentrationen?
- Welche potentiellen, zukünftigen Einsatzmöglichkeiten der erarbeiteten Methodik wären denkbar und welche Rahmenbedingungen müssten ggf. erfüllt sein?

3 Untersuchungsgebiet und Datengrundlage

Um die Zielsetzung einer messreihenbasierten Analyse des regionalen CO₂- und CH₄-Haushalts einer Untersuchungsregion trotz der damit einhergehenden und im vorherigen Kapitel skizzierten Herausforderungen adäquat zu erfüllen, wird auf die Klimagaszeitreihen hochgelegener Messstandorte hoher Repräsentativität fernab lokaler Emissionsquellen zurückgegriffen. Diese sind aufgrund ihrer exponierten Lage besonders geeignet für Untersuchungen zur Quellherkunft der Klimagase, da sie den Zustand der unteren freien Troposphäre ebenso erfassen wie den Ferntransport von Luftmassen und Luftbeimengungen.

Erfüllt werden diese notwendigen Gegebenheiten in Mitteleuropa insbesondere an den Observatorien im alpinen Hochgebirge, wo bedingt durch die überregionale Repräsentativität der dortigen Messungen die Erfassung der Luftmassen auf höchstpräzisem, qualitätsgesichertem Niveau gemäß den Qualitätsstandards des internationalen Atmosphärenbeobachtungsprogramms Global Atmosphere Watch (GAW) der Weltmeteorologieorganisation (WMO) der Vereinten Nationen erfolgt. Dieses Gütesiegel der Datenqualität in Verbindung mit der weitreichenden Repräsentativität der gemessenen Klimagaskonzentrationen bescheinigt den Messdaten der hochalpinen Observatorien ideale Voraussetzungen für die herkunftsbezogenen Analysen der Klimagaszeitreihen.

Dementsprechend basieren die in dieser Arbeit vorgestellten Untersuchungen des CO₂- und CH₄-Haushalts auf den Messreihen folgender vier hochalpiner Messstationen, die eine möglichst weitreichende Abdeckung des Alpenraums als Kerngebiet der mitteleuropäischen Untersuchungsregion vom Südwesten bis zum Nordosten gewährleisten (s. Tab. 3.1 für geographische Details zu den vier Alpenobservatorien sowie Tab. 3.2 für Informationen zu den dortigen Instrumenten der CO₂- bzw. CH₄-Messungen):

- Umweltforschungsstation Schneefernerhaus (UFS)
- Sphinx-Observatorium Jungfraujoeh (JFJ)
- Sonnblick-Observatorium (SON)
- Observatorium Plateau Rosa (PRO)

Tab. 3.1: Übersicht der vier hochalpinen Observatorien, deren Klimagasmessreihen die Datenbasis für die Charakterisierung des CO₂- und CH₄-Haushalts des Alpenraums bilden

Name der Messstation (Abkürzung)	Land	geograph. Breite [°Nord]	geograph. Länge [°Ost]	Höhe [m ü. NN]
Umweltforschungsstation Schneefernerhaus/Zugspitze (UFS)	Deutschland	47,42	10,98	2.670
Sphinx-Observatorium Jungfrauoch (JFJ)	Schweiz	46,55	7,98	3.450
Sonnblick Observatorium (SON)	Österreich	47,05	12,96	3.106
Observatorium Plateau Rosa (PRO)	Italien	45,93	7,70	3.480

Tab. 3.2: Übersicht der Instrumente zur CO₂- bzw. CH₄-Messung an den vier hochalpinen Observatorien

Name der Messstation	Klimagas	Modellbezeichnung (Einsatzzeitraum)	Hersteller	Messprinzip
Hoher Sonnblick	CO ₂	Uras14 (2000–2012)	ABB	NDIR
		G2301 (seit 2012)	Picarro	NDIR
Jungfrauoch	CO ₂	G1301 (2010–2011)	Picarro	CRDS
		G2401 (seit 16.9.2011)	Picarro	CRDS
Plateau Rosa	CO ₂	Ultramat	Siemens	NDIR
Zugspitze/ Schneefernerhaus	CO ₂	HP 6890 modified (2001–2012)	HP/Agilent	GC-FID
		Envirosense 3000i (2012–2015)	Picarro	CRDS
Hoher Sonnblick	CH ₄	G2301	Picarro	CRDS
Jungfrauoch	CH ₄	G1301 (2010–2011)	Picarro	CRDS
		G2401 (seit 16.9.2011)	Picarro	CRDS
Plateau Rosa	CH ₄	Venus 301	NIRA	GC-FID
Zugspitze/ Schneefernerhaus	CH ₄	HP 6890 modified (2001–2012)	HP/Agilent	GC-FID
		Envirosense 3000i (2012–2015)	Picarro	CRDS

Ausschlaggebend für die Wahl dieser vier Messstationen als Datenbasis ist neben der Gewährleistung höchster Datenqualität gemäß den GAW-Standards, denen die Messstandorte obliegen, insbesondere ihre exponierte Lage im Hochgebirge, welche die überregionale Repräsentativität der Messungen bei gleichzeitiger Vermeidung von Störeinflüssen lokaler Emittenten im unmittelbaren Umfeld der Messstationen sicherstellt. Die vier ausgewählten Observatorien sind entlang des Alpenhauptkamms von Südwesten bis nach Nordosten lokalisiert, wodurch das Hauptuntersuchungsgebiet innerhalb der Perimeter der Alpenkonvention ebenso abgedeckt wird wie das

allseitige Umland der Alpen (s. Abb. 3.1). Die dadurch gewährleistete Abdeckung des Alpenraums als Fokusregion der Charakterisierung des mitteleuropäischen CO_2 - sowie CH_4 -Haushalts einhergehend mit dem zuvor skizzierten höchsten Datenqualitätsniveau bei weitreichender Repräsentativität der Messungen bietet eine ideale Datengrundlage für diese Untersuchungen zur Quellherkunft der Klimagase.



Abb. 3.1: Karte der vier Observatorien (blaue Dreiecke) für die messreihenbasierten CO_2 - und CH_4 -Haushaltsbilanzierungen des Alpenraums (definiert durch die Perimeter der Alpenkonvention in rot) – Fotos v.l.n.r. bzw. West nach Ost: Plateau Rosa, Jungfrauoch, Schneefernerhaus (Zugspitze) und Sonnblick

Quelle: Eigene Darstellung auf Basis des Google Maps Satellitenbildes und unter Verwendung der Fotos des Internetauftritts der Alpenobservatorien

4 Methodik

4.1 Thematische Aufbereitung der Klimagaszeitreihen

4.1.1 Filterverfahren zur Separierung der Luftmassen entsprechend ihrer (über-)regionalen Zugehörigkeit

Erste grundlegende Hinweise auf die Zugehörigkeit von Luftmassen geben Filtermethoden, die über die Identifizierung von lokalen Kontaminationen der Messgröße hinaus eine Differenzierung in die Kategorien großräumige Hintergrundkonzentration und regionale Beeinflussung erlauben. Insbesondere die Messreihen an Hochgebirgsstandorten, die mit ihrer überregionalen Exposition globale Veränderungen detektieren, sind einer zuverlässigen Datenfilterung zu unterziehen. Die in Abhängigkeit von Meteorologie, Jahres- und Tageszeit unterschiedlich stark ausgeprägte Beeinflussung der Messungen mit Luftmassen der planetaren Grenzschicht oder lokalen Verunreinigungen kann mit Hilfe verschiedenster Filterverfahren erkannt und erfasst werden. Für die Differenzierung entsprechend der Zugehörigkeit der gemessenen Werte zur großskaligen atmosphärischen Hintergrundkonzentration, zur regionalen Herkunft oder zu lokalen Quellen wird eine Vielzahl unterschiedlicher Filteransätze über einen fünfjährigen Testzeitraum (2011–2015) für die CO₂-Messungen an der GAW-Globalstation Zugspitze/Schneefernerhaus adaptiert:

- Meteorologische Filterverfahren (Fang et al. 2014/2015, Zellweger et al. 2003), z.B. mittels Windgeschwindigkeiten als Proxy für kontaminierte Luftmassen: CO₂-Konzentrationen, die während Windgeschwindigkeiten von unter 1,0 m/s aufgezeichnet werden, werden als lokal bzw. regional beeinflusst deklariert. Der Grenzwert leitet sich von der deutlichen Abnahme der Standardabweichungen der CO₂-Messwerte, die bei Windgeschwindigkeiten von über 1,0 m/s auftreten, ab.
- Statistische Filterverfahren (Ruckstuhl et al. 2012, Uglietti et al. 2011, Zhang et al. 2015): CO₂-Konzentrationen, deren zeitgleich gemessene Radonwerte das monatliche 10. Perzentil unterschreiten, werden als repräsentativ für den nordhemisphärischen Hintergrund angesehen. Radon fungiert dabei als Tracer für bodennahe Luftschichten, da es als Zerfallsprodukt von Uran und Thorium kontinuierlich der eisfreien Erdoberfläche entweicht und radioaktiver Zerfall bei einer Halbwertszeit von 3,8 Tagen die einzige Senke darstellt. 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).

- Tracerbasierte Filterverfahren [z.B. Aerosole (Collaud Coen et al. 2011), Kohlenstoffmonoxid (Forrer et al. 2000, Tsutsumi et al. 2006), Ruß (Fang et al. 2015), relative Feuchte (Henne et al. 2005), Radon (Crawford et al. 2015, Griffiths et al. 2014, Chambers et al. 2013/2015/2016)] – Radon als exemplarischer, äußerst zuverlässiger Tracer:

Die ausschließlich auf Radonmessungen beruhende Methode geht auf Griffiths et al. (2014) zurück. Hierbei wird die Zeitreihe zunächst nach ihrer anabatischen Kontamination geordnet, bevor ein elftägiger Tiefpassfilter den jeweiligen Tagesgrenzwert für die Hintergrundkonzentration ergibt (detaillierte Beschreibung der Methodik s. Exkurs 1). Die Selektion der Radonmesswerte wird anschließend auf die parallel gemessenen Klimagaskonzentrationen übertragen.

- Tageszeitliche Filterverfahren (Fang et al. 2014):

Durch den Tagesgang der solaren Einstrahlung unterliegt die Umweltforschungsstation Schneefernerhaus einem tageszeitlichen Zyklus der Advektion kontaminierter Luftmassen. Die radonbasierte Filterung identifiziert den Zeitraum zwischen 4 und 10 Uhr UTC als am geringsten von allochthoner Witterung beeinflusste Tageszeit. Darauf basierend werden ausschließlich Messungen dieses Zeitfensters der Hintergrundkonzentration zugeordnet.

- Trajektorienbasierte Filterverfahren (Cui et al. 2011, Manning et al. 2011):

Zur zuverlässigen Bestimmung der Repräsentanz eines jeden Messwerts haben sich Rückwärtstrajektorien als Filtermethode bereits an anderen hochalpinen Messstandorten etabliert (Balzani Lööv et al. 2008). Das vom norwegischen Wetterdienst entwickelte Lagrange'sche Partikel-Dispersionsmodell FLEXPART (Stohl et al. 2005) berechnet alle zwei Stunden die geographische Verteilung der Aufenthaltszeit der an der Umweltforschungsstation Schneefernerhaus gemessenen CO₂-Konzentrationen als Summe über die letzten zehn Tage bis zur Beobachtung. Für die Modellläufe werden die meteorologischen Daten des Global Forecast System Modells (GFS) des National Centers for Environmental Prediction (NCEP) mit einer horizontalen Auflösung von 1° x 1° verwendet. Als repräsentativ für den nordhemisphärischen Hintergrund werden

ausschließlich Messwerte angesehen, die während ihrer zehntägigen Partikeltransportrechnung keinen signifikanten ($> 5\%$ der rückverfolgten Luftpartikel) Kontakt mit der europäischen Grenzschicht verzeichnen.

- Kombinierte Filterverfahren (Balzani Lööv et al. 2008, Bu et al. 2016, Chambers et al. 2013):
Fehlwerte in Messreihen von Tracersubstanzen und spezifische Unzulänglichkeiten einzelner Filteransätze führen dazu, dass die Kombination verschiedener Selektionsverfahren eine fundierte und zugleich konsistente Filterung der Messwerte gewährleistet.

Welche Methodik die Luftmassen am zuverlässigsten nach ihrer (über-)regionalen Herkunft separiert, ist standortabhängig und daher für jede Messstation individuell auszuwählen (Kaiser et al. 2007, Ruckstuhl et al. 2012). Deshalb ist es sinnvoll, zunächst ein möglichst breites Spektrum unterschiedlicher Filterverfahren anzuwenden, um daraus schließlich die genauesten Filterresultate zu erhalten.

Exkurs 1: Radon-Filterverfahren

Die schrittweise Filtermethode nach Griffiths et al. (2014) basiert auf dem terrestrischen Tracer Radon-222, der als Zerfallsprodukt von Uran und Thorium kontinuierlich der eisfreien Erdoberfläche entweicht und anschließend mit einer Halbwertszeit von 3,8 Tagen dem radioaktiven Zerfall als einziger Senke unterliegt. Für die Differenzierung von Messwerten hinsichtlich ihrer regionalen Beeinflussung bzw. ihrer Repräsentativität für die troposphärische Hintergrundkonzentration eignet sich Radon aufgrund dieser Charakteristika besonders gut. Griffiths et al. (2014) haben hierzu eine Methodik entwickelt, die sich in zwei diagnostische Arbeitspakete mit wiederum einzelnen, aufeinander aufbauenden Analyseschritten unterteilen lässt:

- A. Ordnen der Radonzeitreihe nach dem Grad der anabatischen Kontamination:
 1. Die Radonzeitreihe in tageweise Segmente unterteilen.
 2. Die Tage mit Fehlwerten extrahieren.
 3. Von jedem 24 Stunden-Segment den Mittelwert der Radonkonzentration dieses Tages subtrahieren. Der daraus resultierende, ungeordnete Radon-Datensatz der 24 Stunden-Segmente bildet den Eingangsdatensatz.

4. Ausgehend von diesem Eingangsdatensatz werden die täglichen Amplituden der Radonkonzentration berechnet. Die täglichen Amplitudenwerte werden quadriert und durch die Anzahl der Tage des Eingangsdatensatzes geteilt.
 5. Nun folgt separat für jedes 24 Stunden-Segment des Eingangsdatensatzes:
 - a) die Berechnung der täglichen Amplituden der Radonkonzentration aller 24 Stunden-Segmente des Eingangsdatensatzes mit Ausnahme des ausgewählten Tages und anschließend
 - b) die Kalkulation des Mittelwerts aller quadrierten täglichen Amplitudenwerte dieses adaptierten Eingangsdatensatzes, in dem der ausgewählte Tag ausgenommen ist. Dieser Mittelwert des Quadrats wird mit dem analogen Wert des vollständigen Eingangsdatensatzes (Ergebnis von Schritt 4) verglichen.
 6. Das 24 Stunden-Segment, dessen Ausschluss den mittleren Quadratwert des Eingangsdatensatzes am stärksten verringert, erhält seinen ursprünglichen Mittelwert (der in Schritt 3 subtrahiert wurde) wieder addiert und wandert anschließend vom Eingangsdatensatz in den Ausgabedatensatz. Der erste auf diese Weise übertragene Tag erhält die Nummer 1, die darauffolgenden Tage die entsprechend fortlaufende Nummer.
 7. Die Schritte 4 – 6 wiederholen bis der Eingangsdatensatz keine Daten mehr enthält.
- B. Ermittlung des Grenzwertes der Radon-Hintergrundkonzentration:
1. Dazu wird zunächst für jeden Tag i des Ausgabedatensatzes unter Verwendung der zehn umliegenden Tage ($i-5$ bis $i+5$) ein gleitender mittlerer Tagesgang der Radonkonzentration berechnet.
 2. Der niedrigste Wert dieses gleitenden mittleren Tagesgangs der Radonkonzentration wird als Grenzwert der Radonkonzentration des troposphärischen Hintergrunds dieses Tages interpretiert.
 3. Diejenigen Radonmesswerte des Tages i , die kleiner als dieser Grenzwert sind, werden als repräsentativ für die troposphärische Hintergrundkonzentration angesehen.

4.1.2 Saisonalitäts- und Trendbereinigung

Für eine aussagekräftige Kombination der hochpräzisen Klimagasmessreihen der vier aufgeführten hochalpinen Observatorien (s. Kapitel 3) mit den zum jeweiligen Messzeitpunkt an den einzelnen Stationen vorherrschenden synoptischen Transportsituationen, die als Basis für Aussagen zur Quellherkunft von CO_2 bzw. CH_4 dienen, bedarf es vorab der gasspezifischen Saisonalitäts- und Trendbereinigung der CO_2 - und CH_4 -Daten. Die dadurch erzielte explizite Konzentration auf den kurzfristig variierenden Anteil in den Messwerten gewährleistet, dass sich ausschließlich der Einfluss der Emissionsstärke von Quellen und Senken in Verbindung mit der Meteorologie in den anschließenden Arbeitsschritten abbildet.

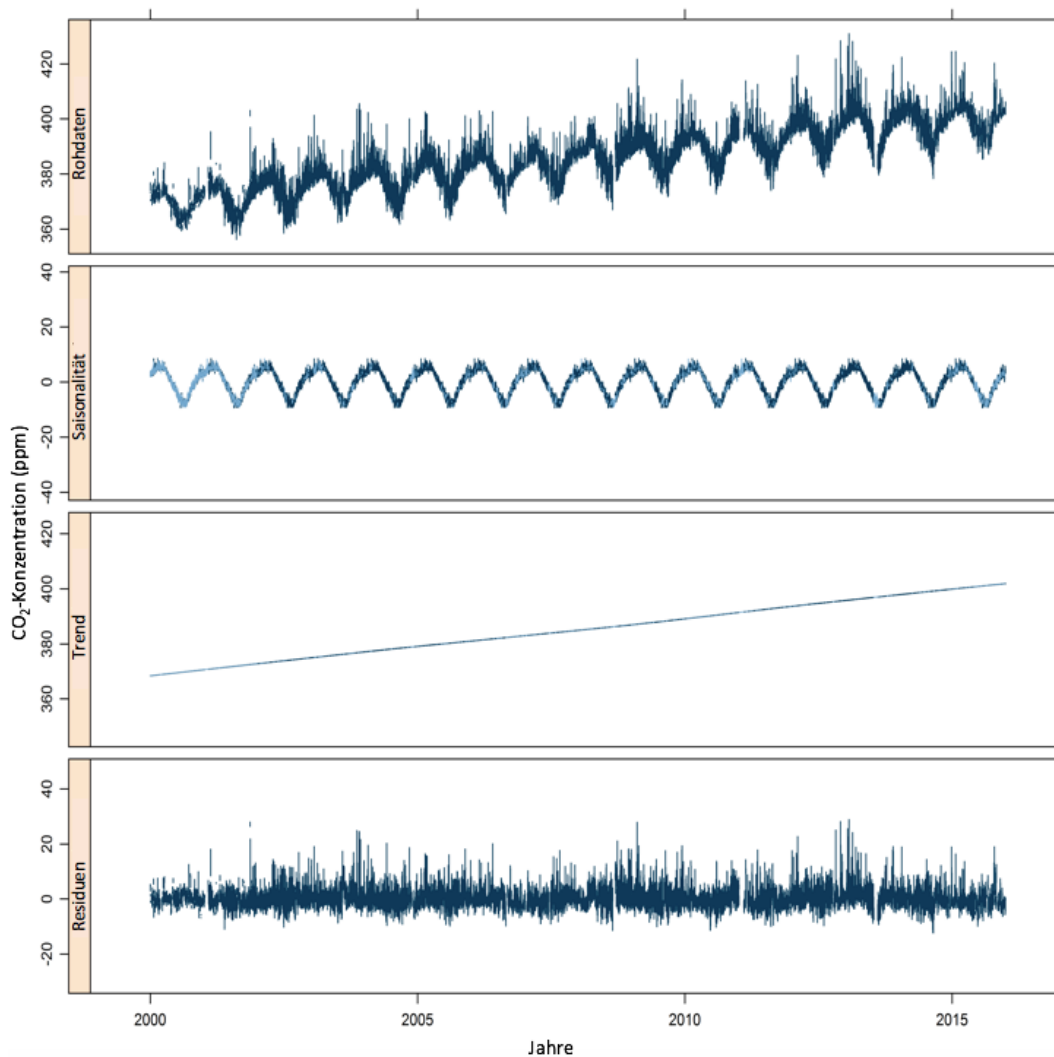


Abb. 4.1: Saisonalitäts- und Trendbereinigung der CO_2 -Messwerte der Umweltforschungsstation Schneefernerhaus 2000–2015 basierend auf dem Verfahren nach Cleveland et al. (1990)
Quelle: Eigene Darstellung

Dazu wird das bewährte und vielfach eingesetzte Verfahren nach Cleveland et al. (1990) angewendet, dessen Resultat Abbildung 4.1 für die exemplarischen CO₂-Messwerte der GAW-Globalstation Zugspitze/Schneefernerhaus der Jahre 2000–2015 wiedergibt. Die unterste Grafik der Abbildung zeigt den kurzfristig variierenden Anteil der Daten ohne Einfluss des langjährigen, anthropogenen Klimawandelsignals (dritte Zeile in Abb. 4.1) und der Saisonalität des biogenen Kohlenstoffkreislaufs (zweite Zeile in Abb. 4.1). Diese Residuen werden stations- und klimagas-spezifisch extrahiert und bilden in Verbindung mit den Zentroidpfaden der Dispersionsimulationen (s. Kapitel 4.2.1.2) die Ausgangsbasis für die CO₂- bzw. CH₄-Haushaltsbilanzierung des Alpenraums auf Grundlage der Messdaten.

4.2 Trajektorienbasierte Untersuchungen zur Quellherkunft von Klimagasen

4.2.1 Rekonstruktion der synoptischen Transportbahnen als Basis der Herkunftsanalysen

4.2.1.1 Lagrange'sches Partikeldispersionsmodell FLEXPART

Die chemischen Eigenschaften einer Luftmasse hängen oft eng mit der Dauer zusammen, die sie vor Kurzem in engem Kontakt mit bodennahen Quellen und Senken verbracht hat. Rückwärtstrajektorien aus der Dispersions- und Transportmodellierung ermöglichen eine vierdimensionale (drei Dimensionen des Raumes und eine Dimension für die Zeitkomponente) Rückverfolgung dieses Pfades, den Luftpakete kürzlich zurückgelegt haben und entlang dem sich ihre charakteristische chemische Zusammensetzung gebildet hat (Crawford et al. 2007). Daher haben sich Rückwärtstrajektorien als zuverlässige Methode zur Untersuchung dynamischer Prozesse in der Atmosphäre auf der synoptischen Skala etabliert (Hopke 2016). 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. Rückwärtstrajektorien aus der Dispersions- und Transportmodellierung sind daher ein weit verbreitetes Werkzeug zur Quellbestimmung von gemessenen Spurengasen und Luftverunreinigungen.

Das beim norwegischen Wetterdienst weiterentwickelte Lagrange'sche Partikeldispersionsmodell FLEXPART simuliert den meso- bis großskaligen Transport von kleinen Luftvolumina in der Atmosphäre unter Berücksichtigung von Diffusion, Konvektion, Turbulenz sowie Trocken- und Feuchtdeposition (Stohl et al. 2005). Der Hauptvorteil von Lagrange'schen Modellen ist, dass es bei ihnen im Gegensatz zu Euler'schen Modellen keine numerische Diffusion gibt. In letzteren wird ein von einer Punktquelle freigesetzter Tracer unmittelbar in einer Gitterbox des Modells gemischt, während Lagrange'sche Modelle von einem Rechengitter unabhängig sind und im Prinzip eine unendlich kleine Auflösung aufweisen (Stohl et al. 2002). Sie basieren auf der Annahme, dass sich die Lagrange'sche Box wie ein Punkt verhält, der den Windmustern folgt (Seinfeld & Pandis 2016). Dabei wird die Parametrisierung der Turbulenz in der planetaren Grenzschicht und der freien Troposphäre im Lagrange'schen Modell mit Hilfe der Langevin-Gleichung gelöst, wobei zusätzlich die stochastische Fluktuation der Positionen aller Partikel durch die Integration eines Drift- und Diffusionsterms mitberücksichtigt wird (Stohl & Thomson 1999). Für Ausbreitungsuntersuchungen von Schadstoffen wird FLEXPART ausgehend von der bekannten Quelle vorwärts in der Zeit betrieben. In seinem Rückwärtsmodus dagegen dient das Modell der Zuordnung von Quellregionen für einen bestimmten Rezeptor (Empfänger).

Die Grundlage der Partikeldispersionsrechnungen und damit auch ihrer Zentroidpfade bilden die antreibenden meteorologischen Felder eines numerischen Wettervorhersagemodells. Da sich das Modell des Europäischen Zentrums für mittelfristige Wettervorhersage (European Centre for Medium-Range Weather Forecasts, ECMWF) als genaueste Rechenbasis in der Dispersionsmodellierung für europäische Untersuchungsgebiete etabliert hat (u.a. Brunner et al. 2012 & 2013, Henne et al. 2016, Stohl et al. 2005), wird FLEXPART mit den meteorologischen Feldern des ECMWF-Wettervorhersagemodells betrieben. Die begrenzte Auflösung der ECMWF-Reanalysefelder sowie des Partikeldispersionsmodells (insbesondere bei der horizontalen Dimension) in Kombination mit der komplexen Topographie des Alpenraums als Fokusregion der Analysen stellen eine besondere Herausforderung dar, die Transportprozesse genau zu beschreiben (Folini et al. 2008, Seibert et al. 1998). Um dieser Herausforderung und insbesondere dem praktischen Problem der Unterschiede zwischen der Modelloberflächenhöhe und den realen Standorthöhen der Alpenobservatorien gerecht zu werden, orientieren sich die Modellsimulationen dieser Arbeit an den bisherigen Erfahrungen aus der Sensitivitätsanalyse mit unterschiedlichen Releasehöhen (Brunner et al. 2012 & 2013, Henne et al. 2016). Diese Studien zeigen durchweg, dass es (unabhängig von der Tageszeit) für Berggipfel am besten funktioniert, Partikel in mittlerer Höhe zwischen Modelloberfläche und Standorthöhe freizusetzen.

Von den auf diese Weise abgeleiteten Releasehöhen der Rezeptor-Observatorien werden jeweils alle zwei Stunden zehntausend Luftvolumina mit den spezifischen Tracereigenschaften des Kohlendioxids bzw. des Methans entlassen und über zehn Tage hinweg rückverfolgt. Die Positionen der dispergierenden Luftpakete werden alle zwei Stunden gespeichert. Für diese sehr rechenkapazitätsintensiven Simulationen, die sich pro Jahr des Untersuchungszeitraums auf über 17.500 zehntägige Partikeldispersionsrechnungen belaufen, wurde auf die informationstechnologische Infrastruktur und Expertise im Umgang mit großen Datenmengen des Leibniz-Rechenzentrums (LRZ) in Garching bei München zurückgegriffen. Dank der Kooperation mit dem LRZ konnten die insgesamt rund 500.000 CPU-Stunden, die für die FLEXPART-Simulationen anfielen, auf mehrere Cluster verteilt werden.

Das visualisierte Ergebnis einer solchen exemplarischen FLEXPART-Partikeldispersionsrechnung ausgehend vom Rezeptorstandort Schneefernerhaus/Zugspitze rückwärts in der Zeit ist in Abbildung 4.2 dargestellt. Die Einheit Emissionssensitivität möglicher Quellregionen ist dabei als Aufenthaltswahrscheinlichkeit zu interpretieren, wobei Gebieten mit höheren Werten ein stärkerer Einfluss auf die simulierte und am Rezeptorstandort erfasste Luftmasse zugesprochen wird als Gebieten mit geringen Aufenthaltszeiten. Die pro Jahr des Untersuchungszeitraums über 17.500 zehntägigen Partikeltransportrechnungen bilden zusammen mit den zum jeweiligen Startzeitpunkt an den Rezeptorstandorten gemessenen CO_2 - bzw. CH_4 -Konzentrationen die Grundlage für die Herkunftsanalysen der klimawirksamen Gase.

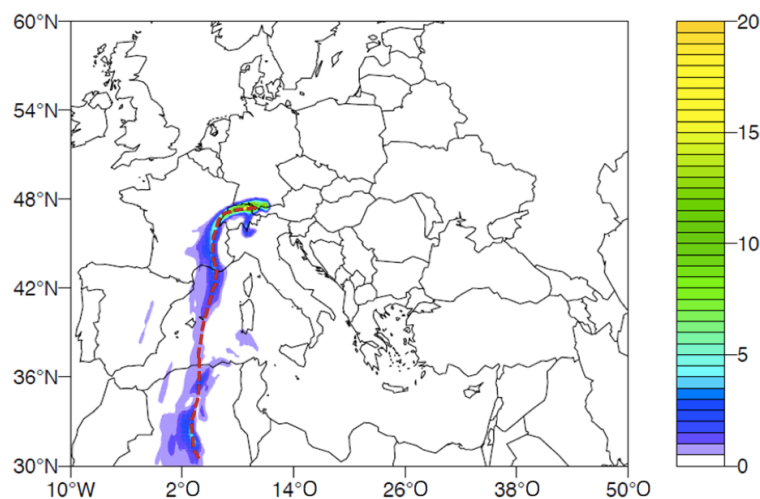


Abb. 4.2: Exemplarische FLEXPART-Partikeldispersionsrechnung [Emissionssensitivität in $\log(\text{s}/\text{m}^3/\text{kg})$] inkl. dem Pfad der Zentroide (rot gestrichelt) entsprechend den mittleren Transportpositionen der Partikelrückverfolgung

Quelle: Eigene Darstellung

4.2.1.2 Zentroidpfade der rückwärts in der Zeit gerichteten Partikeldispersionsmodellierung

Um der eingeschränkten Zuverlässigkeit der Dispersionsrechnungen aufgrund charakteristischer Unsicherheitsfaktoren wie etwa der begrenzten Modellauflösung der meteorologischen Felder und den Parametrisierungen des Partikeldispersionsmodells Rechnung zu tragen und diese zu minimieren, werden die Rückwärtssimulationen der Partikeldispersion in einem ersten Schritt auf den Pfad ihrer Zentroide zusammengefasst. Unter der überprüften Prämisse, dass die Unsicherheiten gleichverteilt sind, bilden die Koordinaten der Zentroide die mittleren und damit am wenigsten fehlerhaften Transportpositionen der Partikelrückverfolgung ab. Die rot gestrichelte Linie in Abbildung 4.2 entspricht dem Zentroidpfad einer exemplarischen FLEXPART-Partikeldispersionsrechnung ausgehend vom Rezeptorstandort Schneefernerhaus/Zugspitze rückwärts in der Zeit.

Die stationsspezifischen Footprints aller rückwärts in der Zeit gerichteten Zentroidpfade mit ihren jeweiligen Rezeptorstandorten Schneefernerhaus, Jungfraujoch, Sonnblick und Plateau Rosa über die Jahre 2011–2015 hinweg gehen aus den Karten der Abbildung 4.3 hervor. Trotz der für die mitteleuropäische Untersuchungsregion charakteristischen Hauptanströmrichtung des Windes aus Westen, die sich in der höheren Frequentierung westlich der einzelnen Messstandorte gelegener Gitterzellen niederschlägt, verdeutlicht die Gegenüberstellung der Karten die stark unterschiedlichen Einzugsgebiete der vier hochalpinen Observatorien. Während sich die Sichtbarkeitsfelder der Observatorien Jungfraujoch und Plateau Rosa vor allem auf die westlichen bzw. südwestlichen Gebiete der Alpen und ihres Vorlandes erstrecken, deckt die Umweltforschungsstation Schneefernerhaus die nördlichen bis nordwestlichen Regionen des Untersuchungsgebietes ab, welches schließlich von Süd- bis Nordost durch das Einzugsgebiet des Sonnblick-Observatoriums vervollständigt wird. Werden die Zentroidpfade der Partikeldispersionsimulationen aller vier Rezeptorstandorte kombiniert, ergänzen sich diese Schwerpunktregionen und bilden ein gemeinsames Einzugsgebiet, das im rot eingefärbten Kerngebiet den Verlauf des Alpenhauptkamms umfasst und damit die Luftmassen über der Untersuchungsregion des Alpenraums hochfrequentiert erfasst (s. Abb. 4.4).

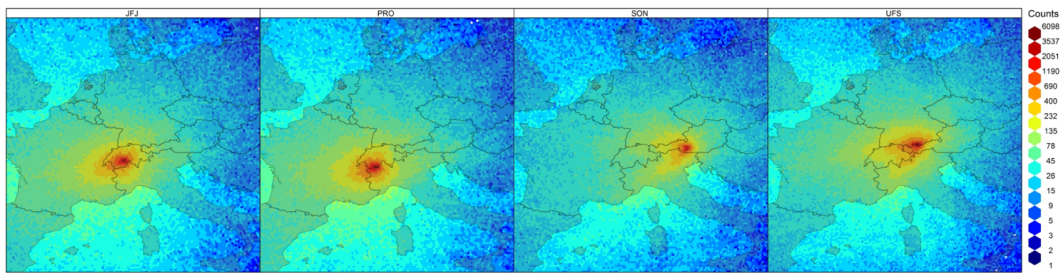


Abb. 4.3: Footprints der Zentroidpfade aus den FLEXPART Partikeldispersionsimulationen für die Stationen Jungfrauoch (JFJ), Plateau Rosa (PRO), Sonnblick (SON) und Schneefernerhaus (UFS) entsprechend der Frequentierung der $0.2^\circ \times 0.2^\circ$ Gitterzellen im jeweiligen Einzugsgebiet durch die Rückwärtstrajektorien über den Untersuchungszeitraum 2011–2015
Quelle: Eigene Darstellung

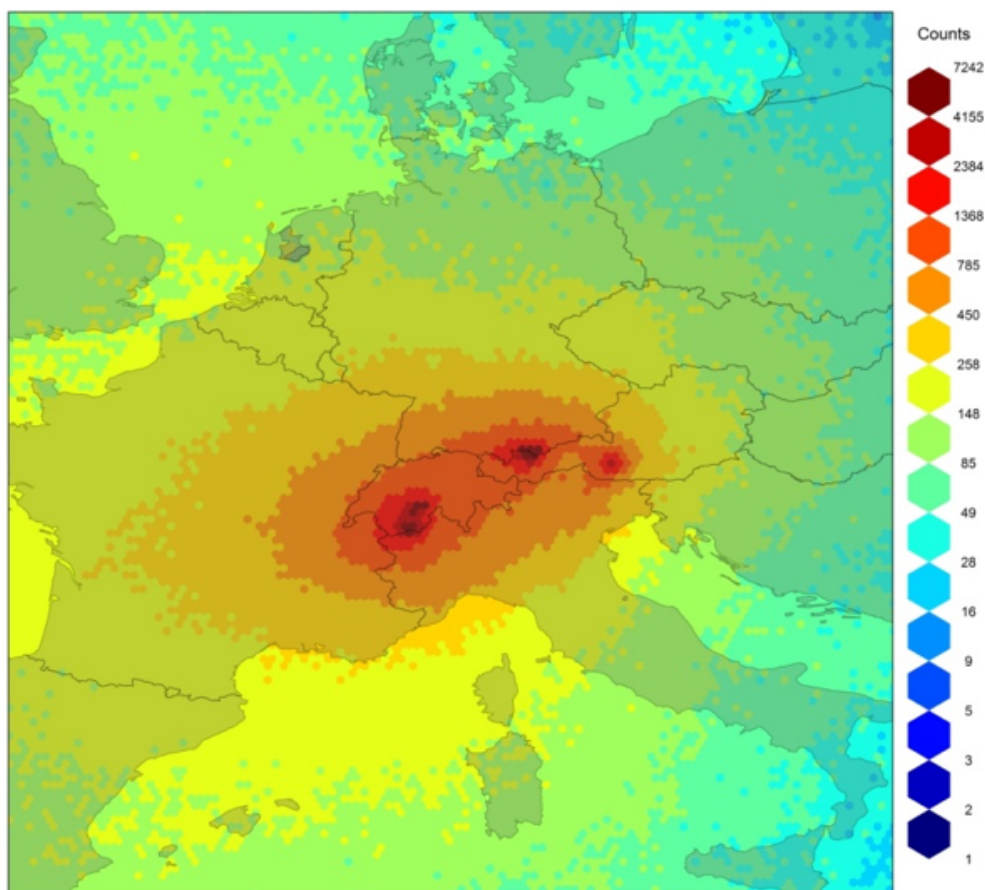


Abb. 4.4: Gemeinsamer Footprint der Zentroidpfade aus den FLEXPART Partikeldispersionsimulationen für die Stationen Jungfrauoch (JFJ), Plateau Rosa (PRO), Sonnblick (SON) und Schneefernerhaus (UFS) entsprechend der Frequentierung der $0.2^\circ \times 0.2^\circ$ Gitterzellen im kombinierten Einzugsgebiet durch die Rückwärtstrajektorien über den Untersuchungszeitraum 2011–2015
Quelle: Eigene Darstellung

4.2.2 Trajektoriencluster

Um den Zusammenhang zwischen Klimagaskonzentrationen von Luftmassen, die an einem Standort gemessen werden, und deren Herkunft in Form von Rückwärtstrajektorien zu analysieren, gibt es eine Vielzahl unterschiedlicher Methoden zur Klassifikation von Trajektorien. Diese können grob in zwei unterschiedliche methodische Herangehensweisen unterteilt werden. Die erste besteht darin, die Trajektorien mittels statistischer Verfahren zu gruppieren und daraufhin die Klimagaskonzentrationen am Rezeptorstandort für jede Trajektoriengruppe zu analysieren, um zu sehen, ob einzelne Cluster mit unterschiedlichen Konzentrationsniveaus assoziiert sind. Neben dieser statistischen Klassifikationsmethode (Clusteranalyse, CA) untersucht ein zweiter Ansatz Luftmassen hinsichtlich des geographischen Einflusses auf ihre chemische Zusammensetzung, indem die Beziehungen zwischen atmosphärischen Messresultaten und dem Verlauf sowie der Verweilzeit der Luftmassen auf der Grundlage von Rasterkarten visualisiert wird (Fleming et al. 2012). Als prominenter Vertreter dieses Verfahrens, das die geographische Herkunft ebenso wie die Aufenthaltszeiten der Luftmassen über potentiellen Quell- und Senkenregionen mit den Klimagasmesswerten zum jeweiligen Ankunftszeitpunkt der Luftmassen an der Messstation verbindet, wird die Methode der konzentrationsgewichteten Trajektorienfelder im nachfolgenden Teilkapitel (s. Kapitel 4.2.3) detailliert beschrieben. Zuvor widmet sich dieses Teilkapitel dem multivariaten statistischen Verfahren der Clusteranalyse.

Das Vorgehen der Clusterung bewirkt, dass eine große Anzahl von Objekten (in diesem Fall Rückwärtstrajektorien) in Gruppen (Cluster) aufgeteilt wird, sodass die Luftmassenpfade innerhalb eines bestimmten Clusters den anderen Cluster-Mitgliedern ähnlicher sind als den Trajektorien in den anderen Clustern (Charrad et al. 2014). Damit soll jedes Cluster eine möglichst große interne Homogenität aufweisen, sich von den anderen Clustern aber gleichzeitig so stark wie möglich unterscheiden. Die Gruppierung einzelner Trajektorien eines Ensembles in eine kleinere Anzahl von Clustern folgt dem Prinzip der Reduktion von Modellunsicherheiten, mit denen jede einzelne Rekonstruktion eines Luftmassenpfades behaftet ist (Brankov et al. 1998, Cape et al. 2000).

Erstmals wurde das CA-Verfahren 1986 von Moody auf Rückwärtstrajektorien angewandt, der die Fähigkeit der Methodik erkannte, Unterschiede der Luftmassenherkunft gleichzeitig in x-, y- und z-Richtung sowie bzgl. der Windgeschwindigkeit zu berücksichtigen. Demnach dient die Clusterung von Rückwärtstrajektorien in erster Linie der Postprozessierung von Luftmassenpfaden nach ihrer Historie. Durch die Gruppierung von Messdaten ähnlicher geographischer Herkunft können Informationen über Klimagaskonzentrationen bestimmter Ursprungsregionen gewonnen werden

(Carslaw 2015).

Es gibt eine Vielzahl von CA-Techniken und mehrere Maße zur Quantifizierung der Güte der Clusterungsergebnisse. Die beiden grundsätzlich zu differenzierenden Vorgehensweisen von Clusteralgorithmen sind hierarchische und nicht-hierarchische Techniken (Fleming et al. 2012):

- Nicht-hierarchische – oder partitionierende – CA-Verfahren versuchen, den bereits vorab klassifizierten Datensatz durch Umgruppierungen der Objekte derart zu optimieren, dass die interne Variabilität innerhalb der Cluster minimiert und die externe Variabilität zwischen den verschiedenen Gruppen maximiert wird. Der prominenteste Vertreter dieser CA-Methode ist das k-means-Verfahren, das in Exkurs 2 beschrieben wird.
- Hierarchische CA-Techniken beginnen mit der maximalen (agglomeratives bzw. Bottom-up Verfahren) bzw. minimalen (divisives bzw. Top-down Verfahren) Aufteilung des Datensatzes. Die minimale Partitionierung entspricht der Gesamtheit aller Objekte, während bei der maximalen Partitionierung jedes Objekt ein eigenes Cluster bildet. Durch Separieren bzw. Agglomerieren werden anschließend neue Cluster gebildet, wobei einmal gebildete Cluster nicht mehr aufgelöst oder einzelne Objekte zwischen den Gruppen nicht mehr ausgetauscht werden können.

Exkurs 2: k-means Clusteranalyse

Das k-means-Verfahren ist die am häufigsten verwendete Form der nicht-hierarchischen CA für die Anwendung auf Trajektorien. Dabei handelt es sich um einen iterativen Algorithmus, der eine vorgegebene Anzahl (k) zu bildender Cluster verwendet, anhand dessen zunächst eine zufällige Kategorisierung vorgenommen wird. Anschließend wird für jedes der k Cluster der Clusterzentroid berechnet, der sich aus den Mittelwerten der (standardisierten) Variablen innerhalb eines Clusters ergibt. Jedes Objekt wird nun demjenigen Cluster (neu) zugeordnet, zu dessen Clusterzentroid es die geringste quadrierte euklidische Distanz aufweist. Dieser Austauschprozess wird solange fortgeführt, bis der Algorithmus keine bessere Klassifizierung mehr findet. Das Ergebnis der k-means CA ist jedoch nicht eindeutig, was neben der vorherigen Vorgabe der Clusteranzahl ein Hauptkritikpunkt dieses Verfahrens ist. Dennoch wird diese Methode der CA häufig eingesetzt, da sie sich aufgrund ihrer relativ geringen Rechenanforderungen gut für große Datensätze eignet.

Um für beide Varianten der CA zu entscheiden, welche Clusteranzahl die Struktur des Datensatzes am sinnvollsten wiedergibt ohne einerseits einen zu großen Informationsverlust in Kauf zu nehmen oder andererseits zu umfangreich zu bleiben, gibt es wiederum eine Vielzahl verschiedenartiger Indizes zur Auswahl der besten Clusteranzahl (u.a. Silhouette-Index, Beale-Index, Hubert-Index, Ratkowsky-Index). Eine zuverlässige Entscheidung über die aussagekräftigste Clusteranzahl ergibt sich demnach nicht auf Basis eines dieser Indizes, sondern wird über die höchste Übereinstimmung mehrerer (hier: 30) dieser Indizes gefällt (Charrad et al. 2014).

Neben der Auswahl des Cluster-Algorithmus und der Entscheidung über die Clusteranzahl ist für die Durchführung einer CA außerdem festzulegen, welches Proximitäts- bzw. Distanzmaß zur Kategorisierung der Objekte herangezogen wird. Ein vielfach verwendetes und verhältnismäßig einfaches Maß zur Beurteilung der Ähnlichkeit der zu clusternden Objekte ist die Euklidische Distanz. Angewandt auf die Resultate der Transport- und Dispersionsmodellierung ergibt folgende Formel die Euklidische Distanz zwischen zwei Trajektorien:

$$d_{1,2} = \left(\sum_{i=1}^n ((X_{1i} - X_{2i})^2 + (Y_{1i} - Y_{2i})^2 + (Z_{1i} - Z_{2i})^2) \right)^{\frac{1}{2}}$$

Dabei sind X_1 , X_2 , Y_1 , Y_2 und Z_1 , Z_2 die standardisierten Koordinaten des Breiten- und Längengrades sowie der Höhe der Rückwärtstrajektorien 1 und 2, deren 'Länge' n sich aus der Dauer der Rückverfolgung ergibt. Beispielsweise ist bei einer Rückverfolgung der Luftmasse über zehn Tage und einer Ausgabe der aktuellen Position des Zentroidpfades der Partikeldispersion alle zwei Stunden $n = 120$.

Angewandt auf die standardisierten Zentroidpfade der FLEXPART Dispersionsmodellierung, die die Luftmassenherkunft an einer Messstation beschreiben, dient die CA als strukturentdeckendes Verfahren, das relevante atmosphärische Transportmuster mit Einfluss auf die dort gemessenen Klimagaslevel identifiziert. Das Ergebnis einer exemplarischen k-means-CA mit der euklidischen Distanz als Proximitätsmaß für die Rückwärtstrajektorien, die zwischen 2000 und 2015 an der GAW-Globalstation Zugspitze/Schneefernerhaus angekommen sind, wird in Abbildung 4.5 zusammen mit den relativen Auftretshäufigkeiten der einzelnen Cluster in Prozent dargestellt.

Werden die Cluster schließlich mit der zugehörigen und um Saisonalität und langjährigen Trend bereinigten Klimagaskonzentration des Rezeptorstandorts UFS (s. Abb. 4.1) in Verbindung gesetzt, bedarf es zunächst der Bestätigung signifikanter Unterschiede in den Klimagasverteilungen jedes Clusters mit Hilfe des nicht-parametrischen Kruskal-Wallis-Tests (Kruskal & Wallis 1952). Die Ablehnung der

Nullhypothese identischer Verteilungen zwischen allen Clustern impliziert signifikante Unterschiede zwischen den Klimagaskonzentrationen der Cluster und bestätigt damit die Trenngenauigkeit der CA ebenso wie deren Funktionalität, Transportmuster qualitativ zu klassifizieren. Im Fall der exemplarischen k-means-CA (s. Abb. 4.5) zeigt sich dabei, dass Luftmassen, die beispielsweise den Clustern eins und fünf zugeordnet sind, im Winter mit erhöhten CO₂-Konzentrationen an der UFS einhergehen, während Luftmassen, die Cluster drei zugehörig sind, mit einer durchschnittlichen CO₂-Reduktion an der Zugspitze in Verbindung stehen (s. Abb. 4.6).

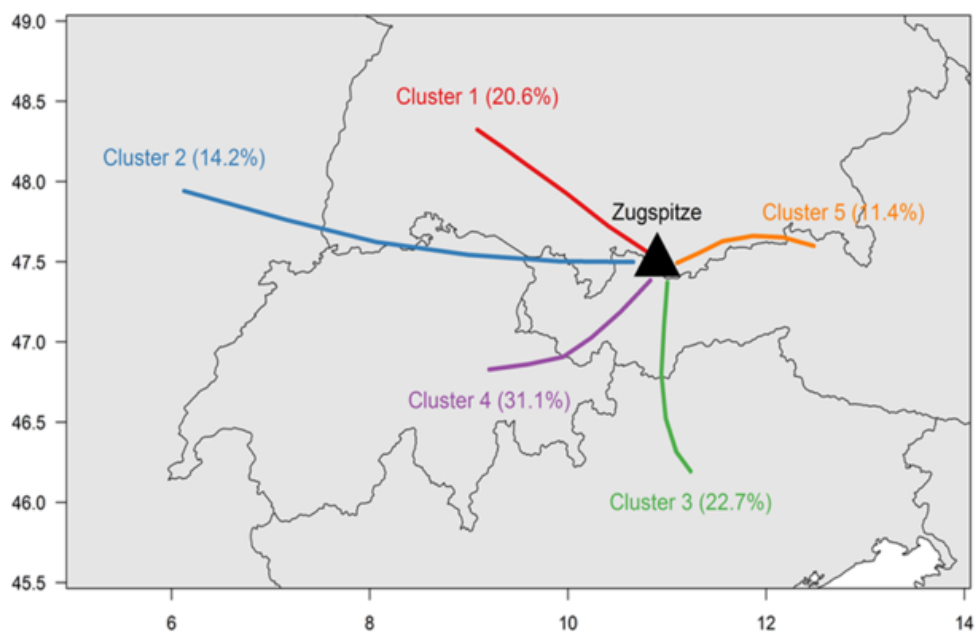


Abb. 4.5: Zentroidpfade (der ersten 12 Stunden) der k-means Clusteranalyse der Rückwärtstrajektorien aus der FLEXPART Partikeldispersionsmodellierung, die die Luftmassenherkunft zwischen 2000 und 2015 an der GAW-Globalstation Zugspitze/Schneefernerhaus rückverfolgen (relative Auftrittshäufigkeiten der einzelnen Cluster in Prozent)

Quelle: Eigene Darstellung

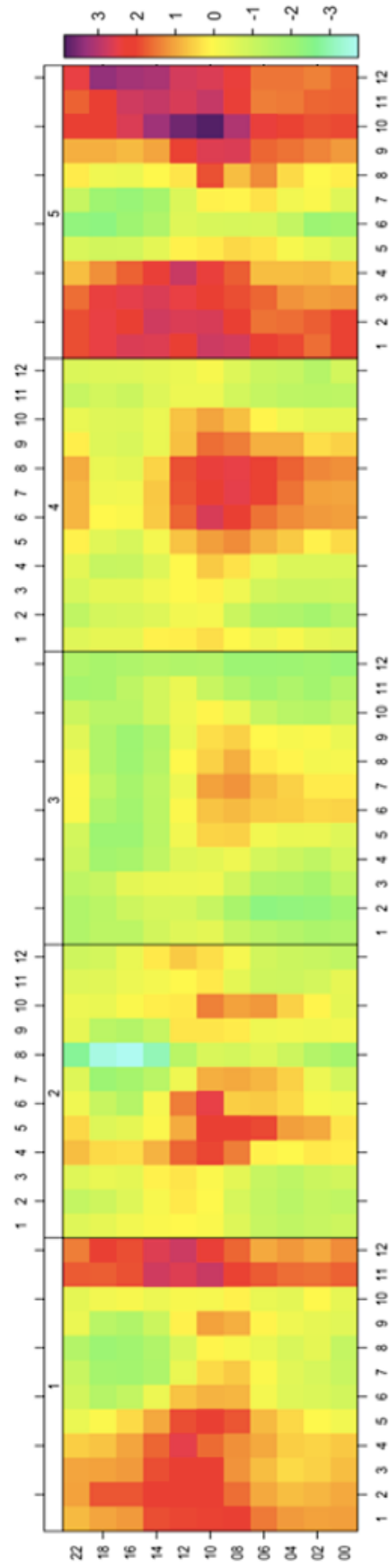


Abb. 4.6: Tages- (Spalten) und Jahressgang (Zeilen) der um Saisonalität und Trend bereinigten mittleren CO_2 -Konzentrationen (in ppm), die zwischen 2000 und 2015 an der GAW-Globalstation Zugspitze/Schneefernerhaus gemessen und den Clustern aus Abb. 4.5 zugeordnet wurden

Quelle: Eigene Darstellung

4.2.3 Konzentrationsgewichtete Trajektorienfelder

Die Detektion geographischer Gebiete mit Einfluss auf die an den vorgestellten Observatorien des Alpenraums gemessenen Klimagaskonzentrationen erfolgt mit Hilfe eines trajektorienbasierten Rezeptormodells. Die Inputdaten für das Rezeptormodell bilden dabei einerseits die hochpräzisen und um ihren langjährigen Trend sowie den Einfluss der Jahreszeiten bereinigten Klimagasmessreihen der Alpenobservatorien und die zu den jeweiligen Messzeitpunkten an den Rezeptorstandorten ankommenden Zentroidpfade der Partikeldispersionsrechnungen andererseits. Detaillierte Emissionsdaten werden für die Anwendung von Rezeptormodellen nicht benötigt. Die grundlegende Annahme, der das trajektorienbasierte Rezeptormodell unterliegt, geht davon aus, dass Rückwärtstrajektorien die Veränderung des atmosphärischen Spurengehalts beim Passieren einer Gitterzelle mit Quellen oder Senken wahrnehmen und effektiv zum Rezeptor transportieren (Carslaw 2015).

Ein komplexerer und vielfach eingesetzter, da mehrfach bewährter Vertreter aus der Familie der trajektorienbasierten Rezeptormodelle ist die Berechnung sogenannter konzentrationsgewichteter Trajektorienfelder (concentration weighted trajectory fields, CWT), die erstmals von Seibert et al. (1994) vorgestellt wurde. Zur Kalkulation der CWT wird das gesamte Untersuchungsgebiet in Gitterzellen untergliedert, deren Zellindizes als i und j definiert sind. Der über den jeweiligen Untersuchungszeitraum gemittelte Beitrag jeder Gitterzelle (ij) zu den Messungen an den Rezeptorobservatorien ergibt sich gemäß folgender Formel aus der Kombination der an den Messstandorten ankommenden Pfade atmosphärischer Luftmassen in Form von Rückwärtstrajektorien (N : Anzahl aller Trajektorien) mit den zeitgleich gemessenen Klimagaskonzentrationen (c_k), wobei die Aufenthaltsdauer der Luftpakete über geographischen Regionen (τ_{ijk}) im Vorfeld ihrer Ankunft und Aufzeichnung am Messstandort ebenso in die Kalkulation miteingeht wie das Konzentrationsniveau des Klimagases (Begum et al. 2005):

$$\bar{C}_{ij} = \frac{1}{\sum_{k=1}^N \tau_{ijk}} \sum_{k=1}^N c_k \tau_{ijk}$$

Um Fehler aufgrund der verringerten Zuverlässigkeit des Quotienten für Gitterzellen mit geringer Trajektorienichte zu vermeiden, werden die Gitterzellen außerdem entsprechend ihrer Frequentierung gewichtet. Das minimiert den Effekt weniger Trajektorienendpunkte in einzelnen Gitterzellen und sorgt dafür, dass die erhöhten Unsicherheiten schwach frequentierter Gebiete Berücksichtigung finden (Polissar et al.

1999). Resultiert nach dieser Korrektur ein hoher Wert für eine Gitterzelle (ij), so verursacht das Passieren von Luftmassen über diese Gitterzelle im Mittel über den Untersuchungszeitraum eine Konzentrationserhöhung an den Rezeptorstandorten. Ein negativer Wert bedeutet dagegen, dass die Gitterzelle durchschnittlich einen konzentrationsenkenden Einfluss auf die Messungen an den Rezeptorstandorten hat (Carslaw 2015).

Emittierende bzw. absorbierende Gitterzellen sind dementsprechend an hohen bzw. niedrigen Werten zu erkennen und ergeben in ihrer Zusammenschau eine Karte, die räumlich hochaufgelöst potentielle Quell- und Senkenregionen mit Einfluss auf die Messwerte der Rezeptorstandorte lokalisiert (Cheng et al. 2015, Hopke 2003). Derartige CWT-Karten fungieren als zuverlässige Indikatoren für die Identifikation von Regionen, die einen positiven oder negativen Effekt auf die Konzentrationen der Messstandorte haben und geben die für die Messungen relevanten Gebiete präzise wieder, wie der Vergleich mit bekannten Emissionsquellen gezeigt hat (Begum et al. 2005, Carslaw & Ropkins 2012).

5 Ergebnisse

5.1 CO₂-Haushaltsuntersuchungen für die Messungen am Schneefernerhaus

5.1.1 Identifikation des standortspezifisch besten Filterverfahrens

Die Identifikation der stationsspezifisch besten Filtermethode erfolgt zusammen mit der Validierung der einzelnen Filterverfahren im Vergleich der unterschiedlich gefilterten Hintergrundkonzentrationen mit den Klimagasdaten der marinen Grenzschicht der Atmosphäre der National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA) (Dlugokencky et al. 2015). In diesem Vergleich mit den NOAA-Referenzwerten unbeeinflusster Luftmassen (vgl. Abb. 5.1) erzielen die Klimagas-Hintergrundkonzentrationen des radon- sowie des trajektorienbasierten Filterverfahrens die stärksten Übereinstimmungen mit Korrelationskoeffizienten der Monatsmittelwerte von über 0,95.

Da das letztgenannte Filterkriterium des Grenzschichtkontakts via Trajektorienmodellierung sehr strikt ist, erfüllt lediglich eine geringe Datenmenge von jährlich drei bis sieben Prozent die Vorgabe keines signifikanten Kontakts mit der Grenzschicht über dem europäischen Festland und kann dieser Definition nach als repräsentativ für die nordhemisphärische Hintergrundkonzentration angesehen werden. Hinzu kommt, dass diesem Filterverfahren zufolge regional unbeeinflusste Luftmassen fast ausschließlich aus den Wintermonaten stammen. Damit erweist sich die Trajektorien-Filtermethodik trotz ihrer hohen Übereinstimmungswerte mit den CO₂-Hintergrundkonzentrationen der NOAA-Referenzwerte in den Monaten November bis Januar als zu restriktiv, um zuverlässig regional kontaminierte von (weitestgehend) unbeeinflussten Luftmassen zu differenzieren. Dementsprechend verbleibt die Radonbasierte Filterung der Luftmassen in Anlehnung an die Methodik von Griffiths et al. (2014) für die CO₂-Konzentrationen, die während der Jahre 2011–2014 an der UFS gemessen wurden, als reliabelste aller angewandten Filtertechniken.

Das Resultat der Anwendung des Radon-Filterverfahrens auf die Radon-Zeitreihe der GAW-Station Schneefernerhaus zeigt Abbildung 5.2 (für den Zeitraum Juli 2011 bis Ende 2015), wobei die dunkelblau eingefärbten Messwerte diejenigen Zeitpunkte markieren, zu denen Luftmassen, die als repräsentativ für die freie Troposphäre angesehen werden können, an der UFS angekommen sind. Demzufolge können 43 % der Messwerte der Jahre 2011–2015 als repräsentativ für den großräumigen Hintergrund angesehen werden, während die restlichen 57 % regional beeinflusst sind.

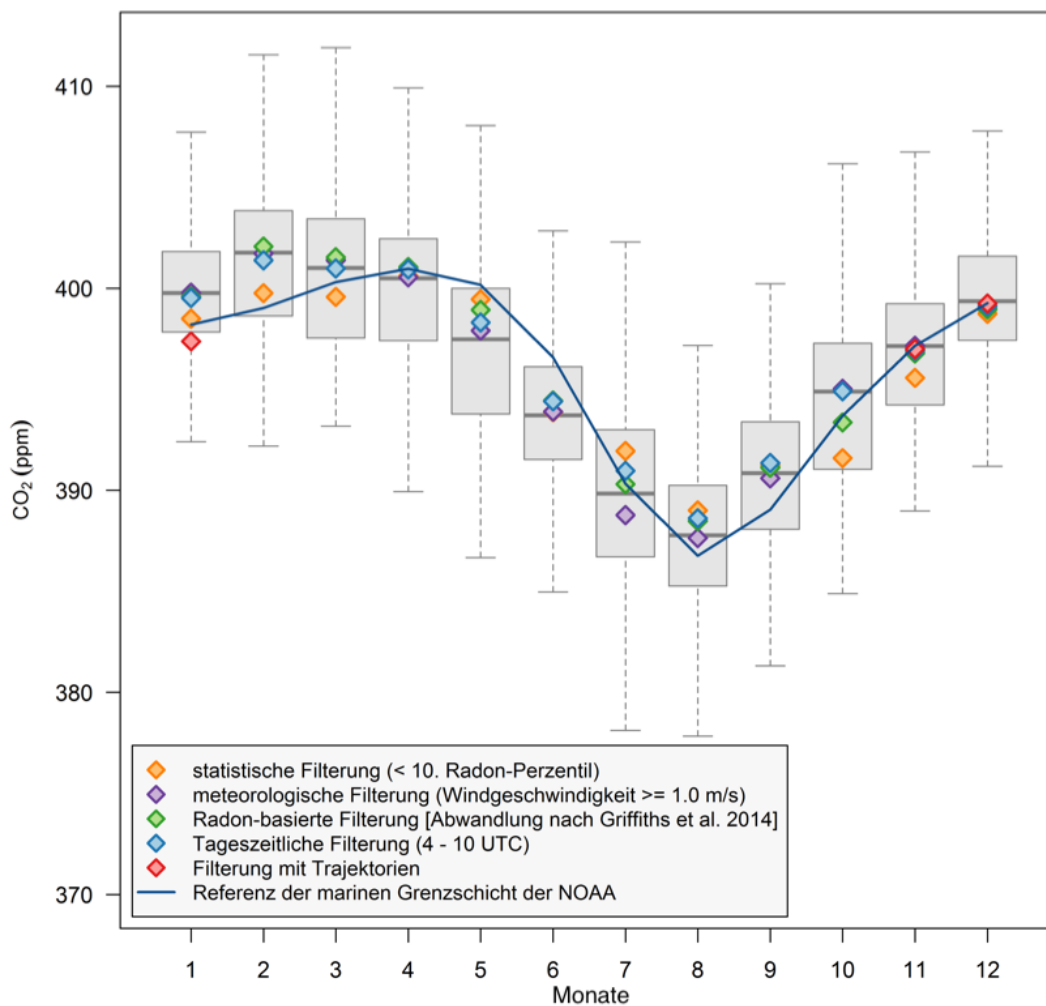


Abb. 5.1: Vergleich der Mediane der monatlichen CO₂-Hintergrundkonzentrationen verschiedener Filtermethoden mit den NOAA-Referenzwerten der marinen Grenzschicht (Zeitraum 2011–2014)
Quelle: Eigene Darstellung

Die mittleren Tagesgänge vor und nach Anwendung der standortspezifisch besten Filtermethode mittels Radon zeigt Abbildung 5.3 exemplarisch für die CO₂-Konzentrationen. 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 CO₂-Konzentrationen der atmosphärischen Grenzschicht und des nordhemisphärischen Hintergrunds im Tagesgang zeigen sich bei den gefilterten Monatsmittelwerten Unterschiede in den Amplituden (s. Abb. 5.4). Die im Jahresmittel um durchschnittlich zwei ppm größere Amplitude der CO₂-Konzentrationen regionalen Ursprungs kommt vor allem im Winter zustande, wenn der verstärkte Energiebedarf in der Heizperiode hohe CO₂-Emissionswerte verursacht. Das saisonale Sommerminimum bedingt durch die CO₂-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.

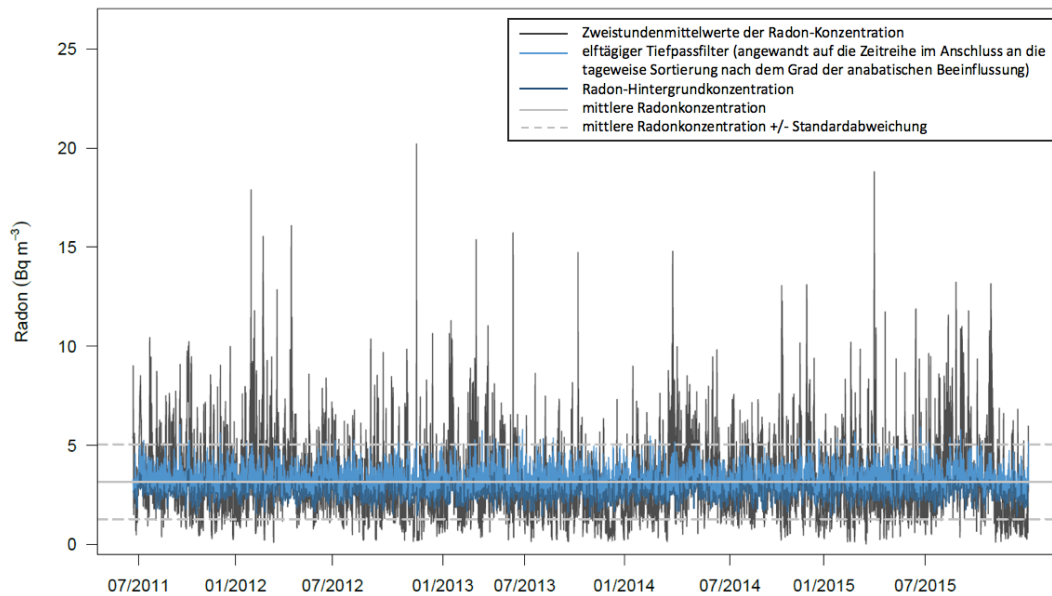


Abb. 5.2: Radon-Zeitreihe (in Bq/m^3) der GAW-Station Schneefernerhaus inkl. der dunkelblau eingefärbten Konzentrationen, die gemäß dem Radon-Filterverfahren als repräsentativ für die freie Troposphäre angesehen werden können (elftägiger Tiefpassfilter zusätzlich in hellblau)
Quelle: Eigene Darstellung

Schließlich lassen sich aus den Resultaten der Filterung die Wachstumsraten der nach ihrer (über-)regionalen Herkunft getrennten CO_2 -Messwerte ableiten. 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. 5.4). 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 stimmt exakt mit vergleichbaren Studien andernorts überein (Tsutsumi et al. 2006) und belegt damit einmal mehr die Funktionalität des radonbasierten Filterverfahrens.

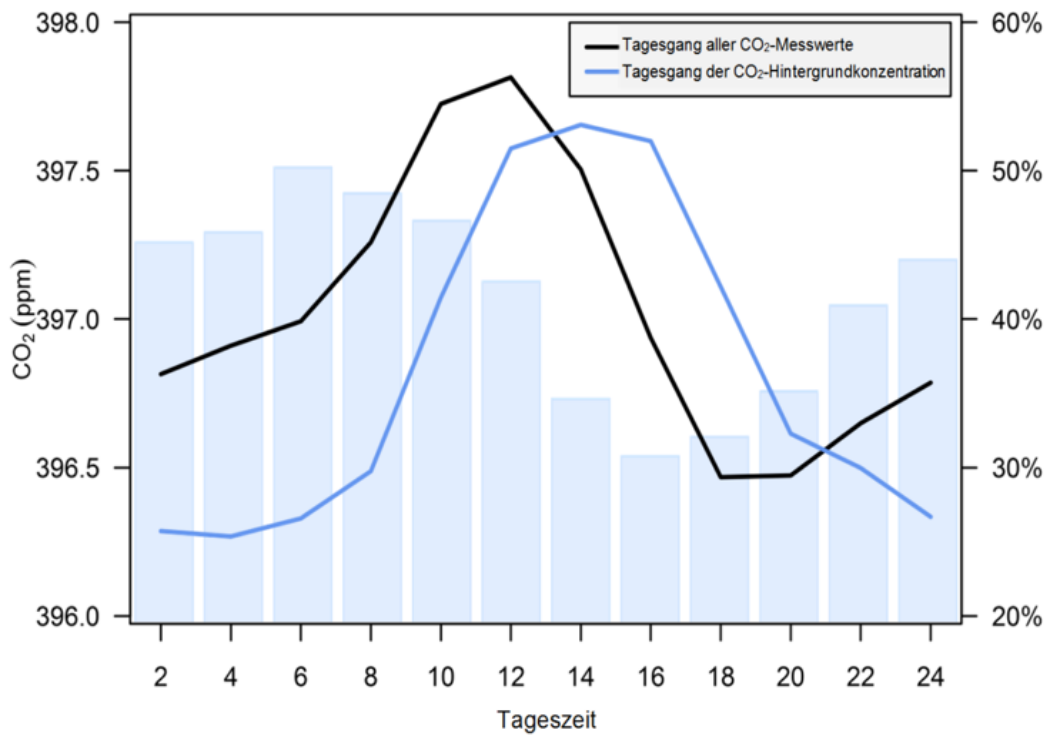


Abb. 5.3: Mittlerer Tagesgang der CO₂-Messungen (in ppm) der Jahre 2011–2015 am Schneefernerhaus vor (schwarz) und nach (blau) der radonbasierten Filterung. Die blauen Säulen geben den prozentualen Anteil der Hintergrundwerte zu jedem Zeitintervall an.
Quelle: Eigene Darstellung

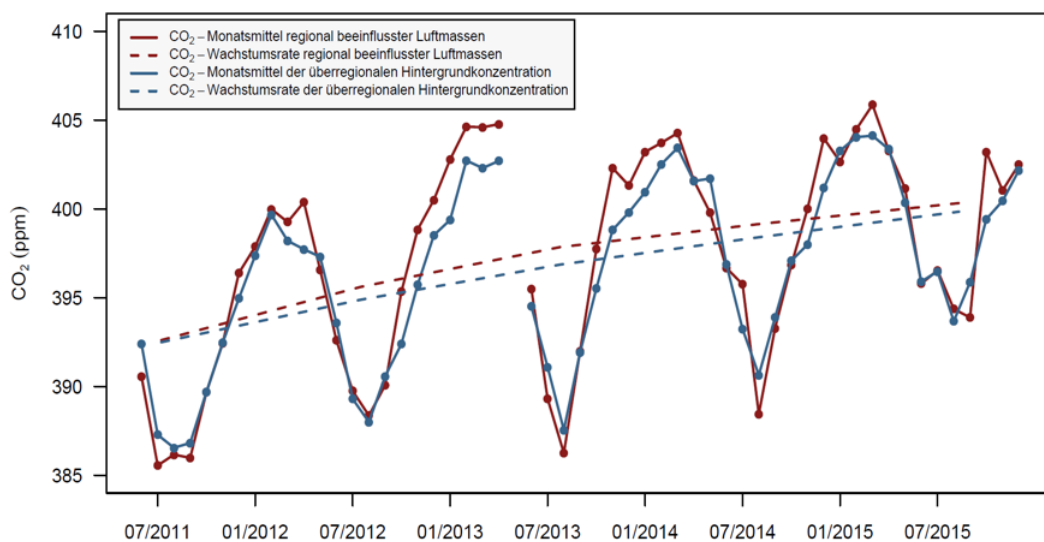


Abb. 5.4: CO₂-Monatsmittelwerte und -Wachstumsraten (in ppm) regional (un-)beeinflusster Luftmassen am Schneefernerhaus von Juni 2011 bis Dezember 2015
Quelle: Eigene Darstellung

5.1.2 Herkunftsanalysen mittels Trajektorienclustern

Das multivariate statistische Verfahren der Clusteranalyse folgt dem Prinzip der Reduktion von Modellunsicherheiten, mit denen die einzelnen Trajektorien behaftet sind (Brankov et al. 1998). Angewandt auf die Rückwärtstrajektorien eines mehrjährigen Zeitraums identifiziert dieses strukturentdeckende Verfahren bedeutsame atmosphärische Transportmuster für die CO₂-Messungen am Rezeptorstandort Schneefernerhaus/Zugspitze. Auf Basis der zuvor durchgeführten Filterung können einflussreiche Luftmassenströme separat für den regionalen Beitrag und denjenigen der nordhemisphärischen Hintergrundkonzentration ermittelt werden.

Hierzu werden zwei voneinander unabhängige Clusteranalysen für die mittels des vorgeschalteten Filterverfahrens separierten Zugehörigkeiten der Luftmassen, die zum Startzeitpunkt der Rückwärtstrajektorien am Rezeptorstandort ankommen, erstellt. Sowohl für die nordhemisphärischen als auch für die mitteleuropäischen Filterergebnisse wird ein weites Spektrum von mehreren hundert Clusteranalysen der entsprechend selektierten Rückwärtstrajektorien berechnet, das sich aus den Variationen von Clusteranzahl, Länge der Trajektorien (ein bis zehn Tage) und Klassifikationsverfahren (k-means, hauptkomponentenbasiert, nach Lund, etc.) zusammensetzt. Dabei kann u.a. auf die am Augsburger Lehrstuhl für Physische Geographie mit Schwerpunkt Klimaforschung entwickelte Klassifikationssoftware *cost733class* (Philipp et al. 2014) zurückgegriffen werden, die eine Vielzahl unterschiedlicher Klassifikationsmodi beinhaltet. Ihre Anwendbarkeit auf die standardisierten x-, y- und z-Koordinaten der Rückwärtstrajektorien konnte im Zuge dieser Arbeit erstmals erfolgreich unter Beweis gestellt werden.

Die Entscheidung, welche Variante der Clusteranalyse die Pfade nordhemisphärischer und mitteleuropäischer Luftmassen zur Messstation mit größtmöglicher interner Homogenität und zugleich stärkster Heterogenität zwischen den Clustern abbildet, ergibt sich aus der höchsten Übereinstimmung 30 verschiedenartiger Indizes zur Auswahl der besten Clusteranzahl (u.a. Silhouette-Index, Beale-Index, Hubert-Index, Ratkowsky-Index (Charrad et al. 2014)). Die beiden als aussagekräftigsten identifizierten Clusteranalyseversionen für nordhemisphärisch sowie für regional repräsentative Luftmassen werden schließlich mit den zugehörigen, um Saisonalität und langjährigen Trend bereinigten CO₂-Konzentrationen (s. Kapitel 4.1.2) des Rezeptorstandortes in Relation gesetzt, um Auskünfte über die Zusammensetzung der Messungen dieses prominenten Klimagases an der Messstation hinsichtlich seines ferntransportierten bzw. regional emittierten Anteils zu erhalten (Baker 2010, Balzani Lööv et al. 2008, Cleveland et al. 1990).

Zur Prüfung der Signifikanz dieser Differenzierung wird der nicht-parametrische Krus-

kal-Wallis-Test (Kruskal & Wallis 1952) mit der Nullhypothese nicht signifikanter Unterschiede zwischen den CO₂-Verteilungen der Trajektoriencluster angewandt (Branckov et al. 1998). Die ausschließlich signifikanten Unterschiede zwischen den CO₂-Konzentrationen der Cluster bestätigen die Trennschärfe der Clusterung und belegen ihre Funktionalität, (über-)regionale Transportmuster zu lokalisieren und qualitativ einzuordnen, ob sie sich konzentrationsmindernd oder -steigernd auf die Kohlendioxidmessungen an der Zugspitze auswirken (Cheng et al. 2013).

So gehen beispielsweise die Herkunftspfade, die den Clustern eins und zwei zugeordnet werden können, der clusterinternen Häufigkeitsverteilungen für die grenzschichtbeeinflussten Luftmassen zufolge meist mit erhöhten CO₂-Konzentrationen an der Zugspitze einher (s. Abb. 5.5 und 5.6). Demgegenüber verursachen Luftmassen, die den Transportwegen drei und vier folgen, verhältnismäßig geringere CO₂-Aufzeichnungen an der Messstation.

In Anbetracht des Vertikalprofils der Clusterpfade (s. untere Graphik in Abb. 5.5) zeigen sich hohe CO₂-Konzentrationen folglich insbesondere bei Luftströmungen, die vor ihrer Detektion an der UFS Kontakt zur planetaren Grenzschicht hatten und dabei der Kontamination in Bodennähe ausgesetzt waren. Luftmassen, die im Vorfeld ihrer Ankunft an der Umweltforschungsstation dagegen aus höheren Troposphärenschichten stammen und keinerlei Grenzschichtkontakt aufweisen, lösen zumeist niedrigere CO₂-Messwerte an der Station aus.

Dieser Zusammenhang setzt sich bei den Clustern der Luftströmungen überregionaler Repräsentativität fort, da auch hier Luftmassen, deren Zentroide dem aus höheren Troposphärenschichten absinkenden Clusterpfad Nummer zwei folgen, generell zu einer Reduktion der CO₂-Messwerte gegenüber dem um die Einflüsse von Saisonalität und langjährigen Trend korrigierten Mittel an der Zugspitze führen (vgl. Abb. 5.7 und 5.8).

Detailliertere Kenntnisse über die vorherrschenden Strömungsbedingungen hinsichtlich ihres Einflusses auf die CO₂-Konzentrationen an der GAW-Globalstation Schneefernerhaus/Zugspitze liefern Darstellungen, die separat für alle Cluster die über den knapp fünfjährigen Untersuchungszeitraum gemittelten Tages- und Jahresgänge gegeneinander abbilden. Für die atmosphärische CO₂-Konzentration zeigt sich, dass die bereits als konzentrationssteigernd kategorisierten regionalen Cluster eins und zwei ihren positiven Einfluss auf das CO₂-Level an der Zugspitze zu unterschiedlichen Jahreszeiten ausüben. Während das Transportmuster des ersten Clusters insbesondere im Sommer für die höchsten Mittelwerte an der Umweltforschungsstation maßgeblich ist, lassen sich die höchsten CO₂-Messwerte des Winterhalbjahres auf Anströmungen des zweiten (und z.T. des fünften) regionalen Clusters zurückführen (s. Abb. 5.9).

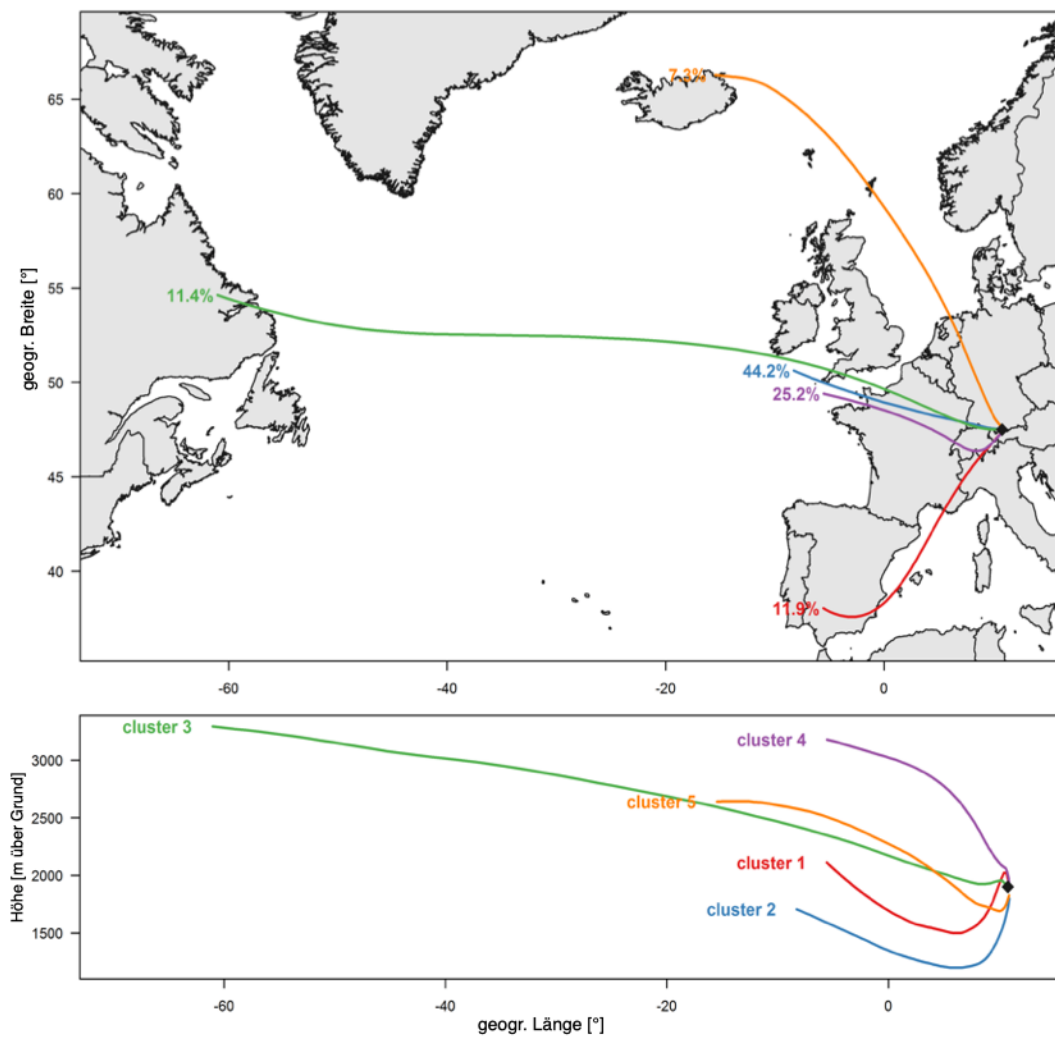


Abb. 5.5: Resultat der Clusteranalyse fünftägiger Rückwärtstrajektorien grenzschichtbeeinflusster Luftmassen, die zwischen 2011 und 2015 an der GAW-Station Zugspitze/Schneefernerhaus eingetroffen sind, aus horizontaler (oben) und vertikaler (unten) Perspektive (relative Auftretshäufigkeiten der jeweiligen Cluster im fünfjährigen Untersuchungszeitraum angegeben in Prozent)

Quelle: Eigene Darstellung

Aus dem Pendant dieser Darstellung für die CO_2 -Maxima anstelle der -Mittelwerte geht schließlich hervor, dass die höchsten CO_2 -Konzentrationen (unter vorheriger Korrektur des Einflusses von Saisonalität und langjährigem Trend) im Winterhalbjahr detektiert werden, wenn Luftmassen den Transportpfaden dieses zweiten regionalen Clusters folgen (s. Abb. 5.10). Anhand der Abbildung 5.11 kann der positive Einfluss dieses Clusters noch exakter auf nördliche bzw. nordöstliche Anströmungsrichtungen eingegrenzt werden.

Insgesamt zeigen sich für hohe winterliche Kohlendioxidkonzentrationen an der UFS folglich Luftmassentransporte verantwortlich, die dem zweiten regionalen Cluster

zugeordnet werden können und aus Nord(ost)en anströmen. Im Sommer hingegen trägt das regionale Cluster Nummer eins maßgeblich zu hohen CO₂-Messwerten an der Umweltforschungsstation bei, bleibt jedoch in seiner Einflussstärke hinter der des zweiten Clusters zurück.

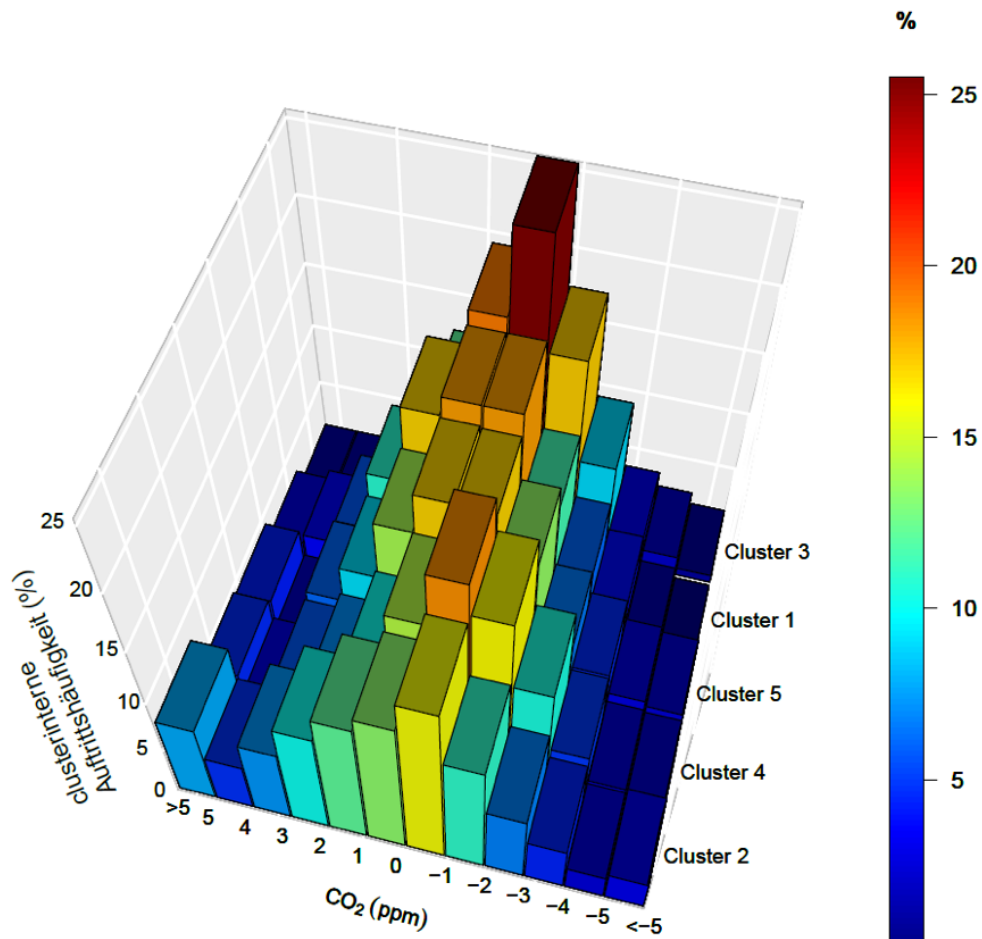


Abb. 5.6: Gegenüberstellung der relativen Auftretshäufigkeiten saison- und trendbereinigter CO₂-Konzentrationen (in Prozent), die zwischen 2011–2015 am Schneefernerhaus gemessen und via Cluster-Analyse den fünf Transportmustern aus Abb. 5.5 zugeordnet wurden
Quelle: Eigene Darstellung

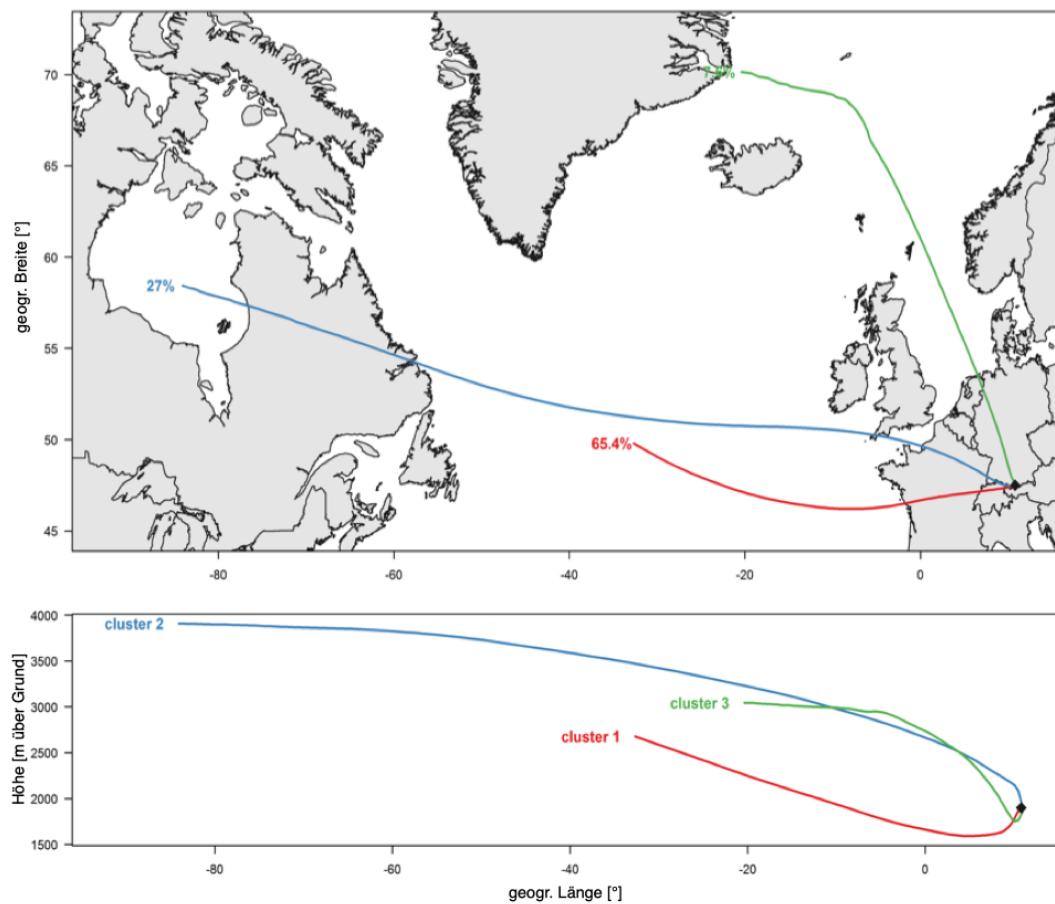


Abb. 5.7: Resultat der Clusteranalyse achttägiger Rückwärtstrajektorien überregional repräsentativer Luftmassen, die zwischen 2011 und 2015 an der GAW-Station Zugspitze/Schneefernerhaus eingetroffen sind, aus horizontaler (oben) und vertikaler (unten) Perspektive (relative Auftrittshäufigkeiten der jeweiligen Cluster im fünfjährigen Untersuchungszeitraum angegeben in Prozent)

Quelle: Eigene Darstellung

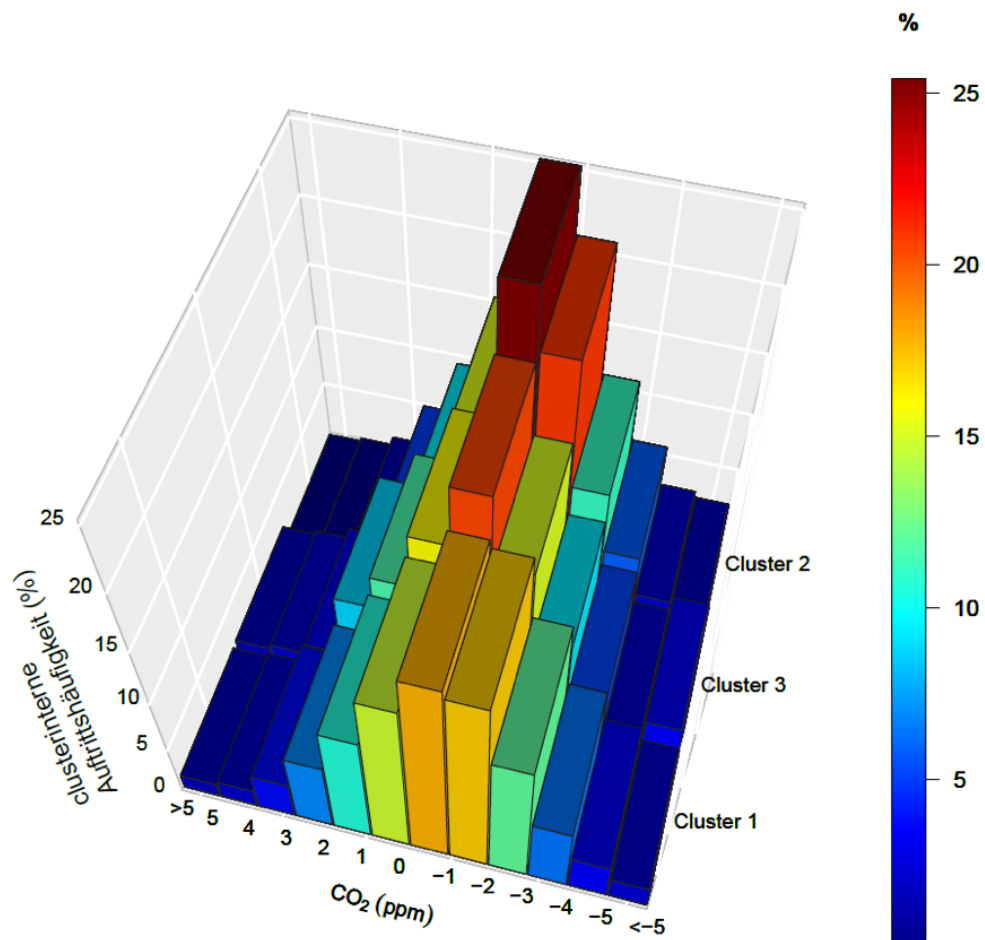


Abb. 5.8: Gegenüberstellung der relativen Auftretshäufigkeiten saison- und trendbereinigter CO₂-Konzentrationen (in Prozent), die zwischen 2011–2015 am Schneefernerhaus gemessen und via Cluster-Analyse den drei Transportmustern aus Abb. 5.7 zugeordnet wurden
Quelle: Eigene Darstellung

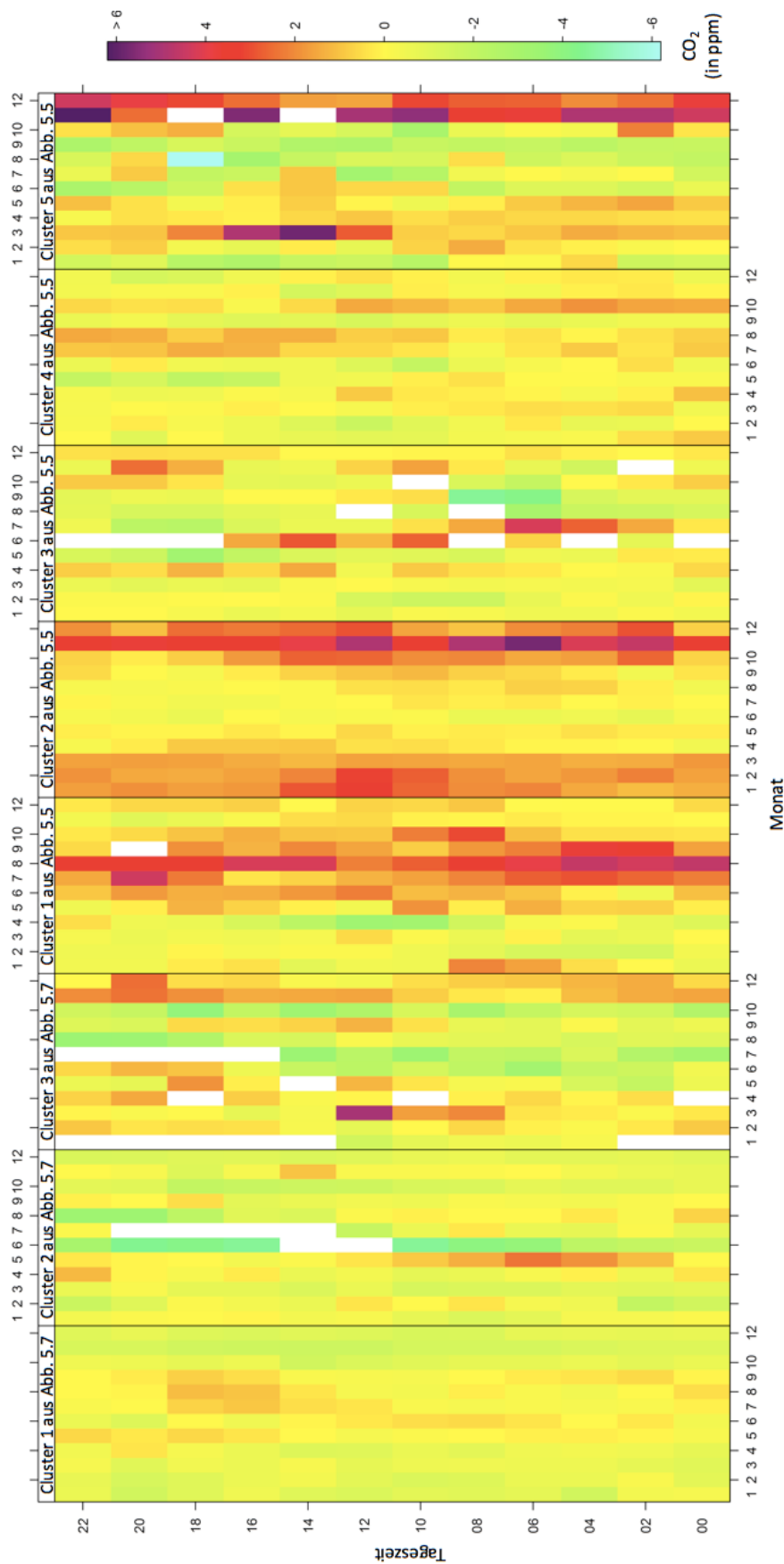


Abb. 5.9: Tages- (Spalten) und Jahresgang (Zeilen) des clusterspezifischen Einflusses auf die mittleren saison- und trendbereinigten CO₂-Konzentrationen (in ppm), die zwischen 2011–2015 am Schneefernerhaus gemessen und via Cluster-Analyse den Transportmustern aus Abb. 5.5 und 5.7 zugeordnet wurden
 Quelle: Eigene Darstellung

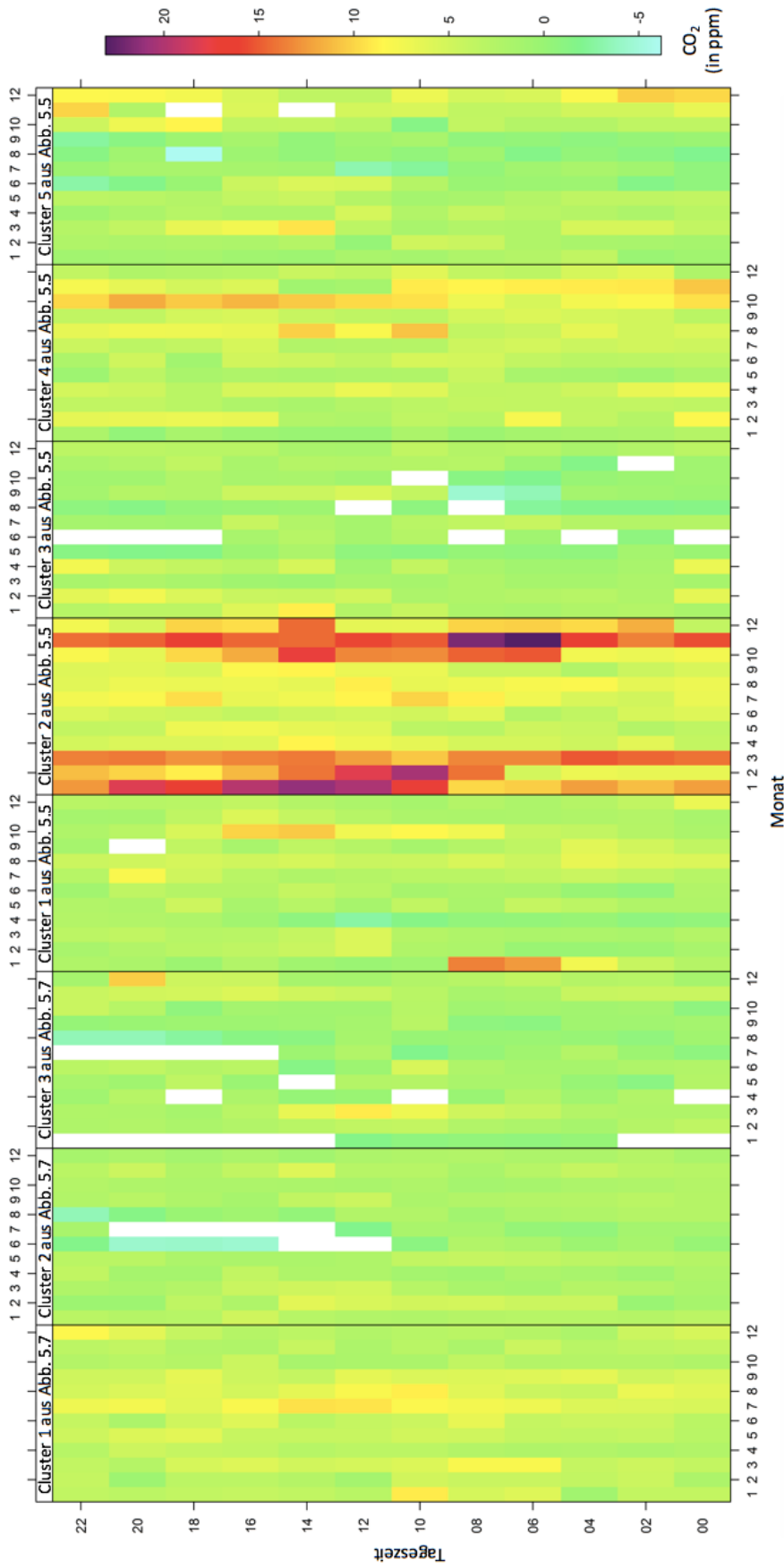


Abb. 5.10: Tages- (Spalten) und Jahresgang (Zeilen) des clusterspezifischen Einflusses auf die maximalen saison- und trendbereinigten CO₂-Konzentrationen (in ppm), die zwischen 2011–2015 am Schneefernerhaus gemessen und via Cluster-Analyse den Transportmustern aus Abb. 5.5 und 5.7 zugeordnet wurden
Quelle: Eigene Darstellung

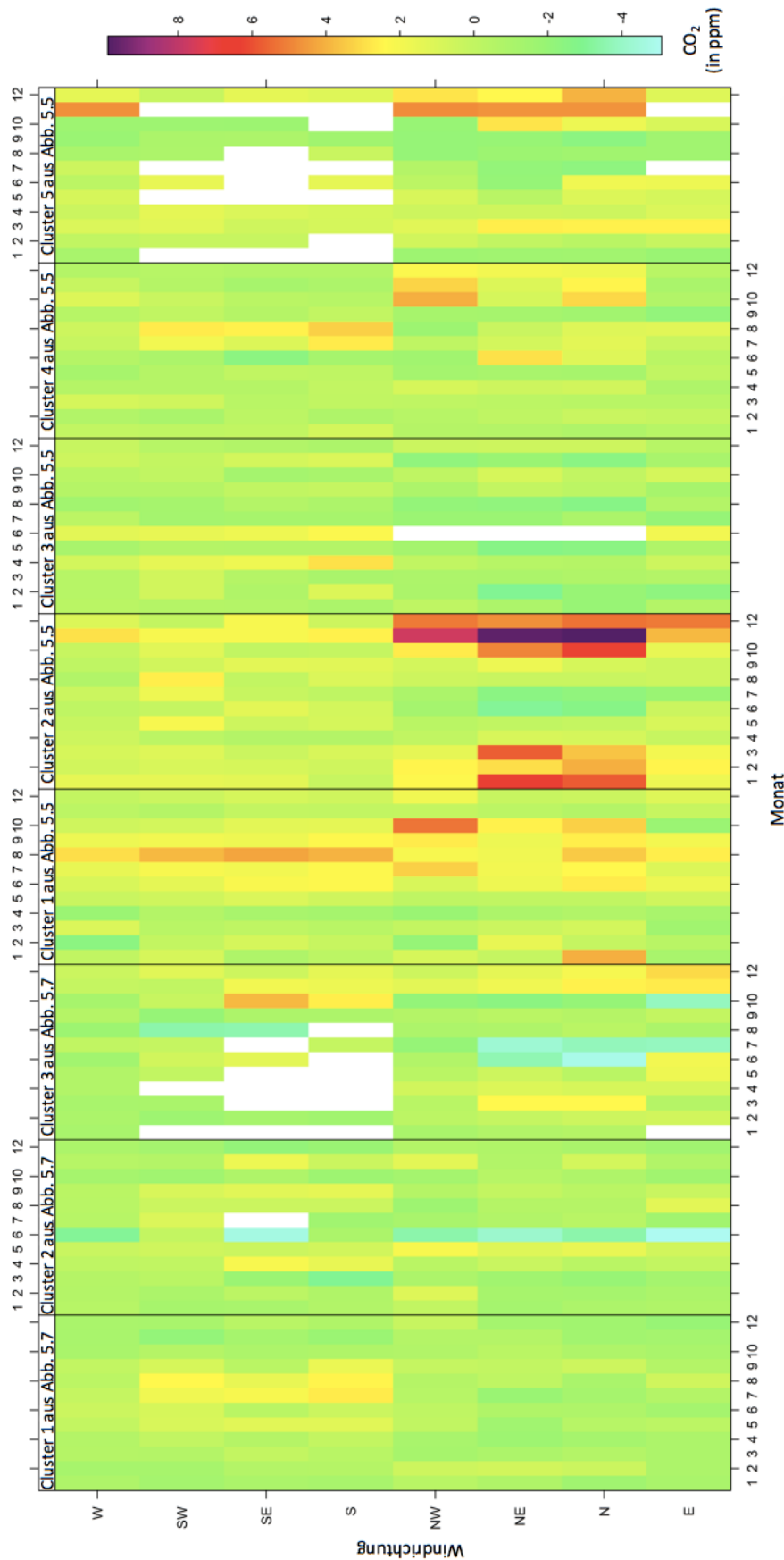


Abb. 5.11: Herkunftssektoren nach Windrichtung (Spalten) und Jahresgang (Zeilen) des clusterspezifischen Einflusses auf die mittleren saison- und trendbereinigten CO₂-Konzentrationen (in ppm), die zwischen 2011–2015 am Schneefernerhaus gemessen und via Cluster-Analyse den Transportmustern aus 5.5 und 5.7 zugeordnet wurden
 Quelle: Eigene Darstellung

5.1.3 Detektion geographischer Gebiete mit Einfluss auf die CO₂-Konzentrationen anhand konzentrationsgewichteter Trajektorienfelder

Die im vorherigen Teilkapitel beschriebene Methode der Trajektoriencluster lässt qualitative Rückschlüsse aus der Relation von Clustern der Rückwärtstrajektorien einer Messstation mit den zeitgleich am Startpunkt aufgezeichneten Klimagasmessungen zu, wobei relevante Transportmuster identifiziert, nicht aber einzelne Quellen und Senken der Treibhausgase lokalisiert werden können (Apadula et al. 2003). Die Detektion geographischer Gebiete mit Einfluss auf die Klimagaskonzentrationen eines Standortes erfolgt über die Berechnung konzentrationsgewichteter Trajektorienfelder, deren Herangehensweise in bisherigen Studien zur Quellzuordnung von Spurengasen an der Untersuchungsstation Schneefernerhaus als bestes statistisches Verfahren aus dem Vergleich unterschiedlicher Methoden hervorgegangen ist (Kaiser et al. 2007).

Wie zuvor die Clusteranalyse verknüpft auch das CWT-Verfahren die an der Messstation ankommenden Pfade atmosphärischer Luftmassen in Form von Rückwärtstrajektorien mit den zeitgleich gemessenen Klimagaskonzentrationen. In Erweiterung zur Clusterung der Rückwärtstrajektorien berücksichtigt die CWT-Methode die Aufenthaltsdauer der Luftpakete über geographischen Regionen im Vorfeld ihrer Ankunft und Aufzeichnung am Messstandort (Begum et al. 2005).

In einem ersten Schritt wird die CWT-Berechnung zur Charakterisierung des CO₂-Haushalts auf Basis der Kombination von Rückwärtstrajektorien und Messreihen für die Umweltforschungsstation Schneefernerhaus/Zugspitze als Rezeptor über den 16-jährigen Untersuchungszeitraum der Jahre 2000–2015 angewandt. Hierzu wird die CO₂-Messreihe der UFS über diesen Zeitraum auf Zweistundenmittel integriert und mit Hilfe des statistischen Verfahrens von Cleveland et al. (1990) um den Einfluss von Saisonalität und langjährigem Trend bereinigt, sodass die extrahierten, zweistündlichen Residuen ausschließlich den kurzfristig variierenden Anteil, der von Witterung und Emissionsstärke anthropogener wie biosphärischer Quellen und Senken geprägt ist, abbilden (s. Abbildung 4.1 in Kapitel 4.1.2).

Parallel dazu wird das Lagrange'sche Partikeldispersionsmodell FLEXPART (Stohl et al. 2005) für den Rezeptorstandort UFS auf Basis der meteorologischen ECMWF-Reanalysefelder des 16-jährigen Untersuchungszeitraums aufgesetzt. Basierend auf den ECMWF-Meteorologiefeldern werden die am Startpunkt UFS alle zwei Stunden entlassenen zehntausend Luftvolumina mit den spezifischen Tracereigenschaften des Kohlendioxids über zehn Tage hinweg rückverfolgt. Die insgesamt über 70.000 zehntägigen Partikeldispersionsrechnungen werden, wie in Teilkapitel 4.2.1.2 erläu-

tert, auf den Pfad ihrer Zentroide zusammengefasst und bilden gemeinsam mit den zum jeweiligen Startzeitpunkt gemessenen CO_2 -Konzentrationen die Grundlage für die Herkunftsanalysen des Kohlendioxids an der GAW-Globalstation Schneefernerhaus. Die Kombination aus den Zentroidpfaden der rückwärts in der Zeit gerichteten Partikeldispersionsrechnungen mit FLEXPART und den trend- und saisonalitätskorrigierten CO_2 -Zweitstundenmitteln der UFS-Messreihe geht in die CWT-Formel zur Berechnung der Quell- und Senkenbeiträge der Gitterzellen des Einzugsgebiets der UFS ein (s. Kapitel 4.2.3).

5.1.3.1 Analyse des gesamten Untersuchungszeitraums

Die nachfolgende Karte der Abbildung 5.12 gibt die Ergebnisse der CWT-Kalkulation berechnet über den 16-jährigen Untersuchungszeitraum 2000–2015 für die CO_2 -Konzentrationen der GAW-Globalstation Schneefernerhaus wieder. Die zentrale Alpenregion tritt dabei – trotz der höchsten Trajektorienfrequentierung im Zuge einer alpinen Station als Rezeptor – über den gesamten Untersuchungszeitraum gemittelt als Kohlendioxidsenke hervor, wohingegen potentielle Quellgebiete ringsum mit Schwerpunkten sowohl nordöstlich der Alpen als auch südwestlich davon verortet werden. Die dominantere der beiden Quellregionen ist dabei die nordöstliche, die Teile des Nordostens Deutschlands und insbesondere weite Flächen (West-)Polens umfasst. Passierten Luftmassen diese Gebiete, verursachten sie im Mittel über die 16 Jahre eine Erhöhung der CO_2 -Konzentration um durchschnittlich drei ppm am Rezeptorstandort UFS. In Anbetracht der Tatsache, dass sich die größten Braunkohlereviere Europas in dieser Region befinden, verweist die CWT-Karte der Abbildung 5.12 auf den deutlich konzentrationssteigernden Einfluss der Braunkohleemissionen auf die CO_2 -Messungen selbst am Luftlinie über 500 km entfernten Observatorium Schneefernerhaus auf Deutschlands höchstem Berg. Für eine fundiertere Herkunftsanalyse der CO_2 -Immissionen, die an der UFS detektiert werden, benötigt es eine detailliertere Aufschlüsselung der Quell- und Senkenbeiträge beispielsweise nach Jahreszeiten und einzelnen Jahren, wie es die folgenden Teilkapitel aufzeigen.

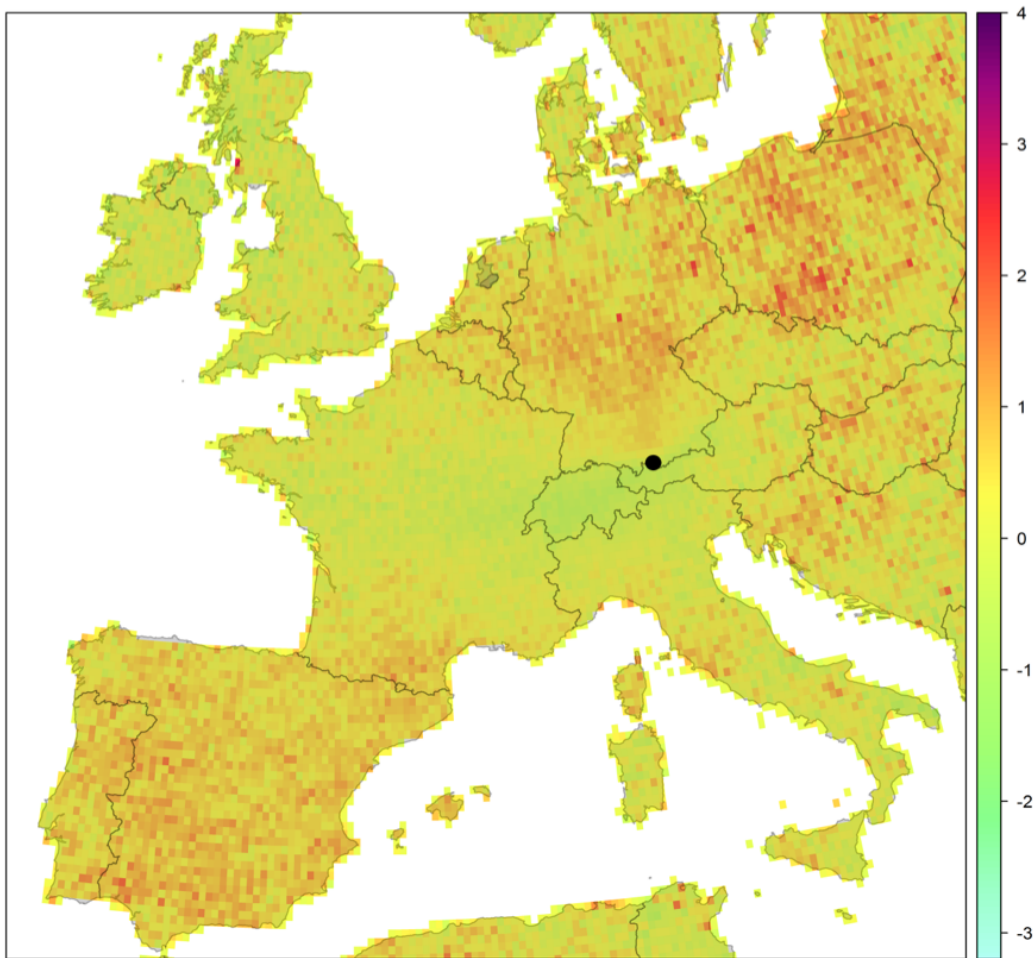


Abb. 5.12: Beiträge aus den farbig codierten Gitterzellen zu den saison- und trendbereinigten CO₂-Konzentrationen (in ppm), die während des Untersuchungszeitraums 2000–2015 an der Station Schneefernerhaus gemessen wurden

Quelle: Eigene Darstellung

5.1.3.2 Saisonale Analysen

So offenbart ein Blick in die saisonal separat berechneten konzentrationsgewichteten Trajektorienfelder der Abbildung 5.13, dass die beiden genannten Schwerpunkte in den Quellregionen jeweils zu unterschiedlichen Jahreszeiten erhöhte CO₂-Konzentrationen an der UFS verursachen. Die sommerlichen Erhöhungen des Kohlendioxidlevels an der Zugspitze rühren demnach aus der nordwestlichen Mittelmeerregion, in der zu dieser Jahreszeit häufig hitzebedingte Feuer auftreten, deren freigesetztes Kohlendioxid eine mögliche Ursache für die im Sommer um durchschnittlich bis zu drei ppm höheren CO₂-Werte am Rezeptor der Umweltforschungsstation bei Luftmassentransport aus diesem Gebiet ist. In den Wintermonaten dagegen strömt

CO₂-reiche Luft aus adverser Richtung zur Zugspitze, wonach die Holz- und Kohlefeuerung aus Nordost-Europa als Hauptverursacher erhöhter CO₂-Konzentrationen zu dieser kalten Jahreszeit angesehen werden kann. Der Einfluss dieser Emittenten kündigt sich bereits im Herbst an und fällt in seinem Beitrag von durchschnittlich vier ppm stärker aus als die sommerlichen Quelleinträge aus der spanischen und südfranzösischen Mittelmeerregion, die sich im Mittel auf Werte von zwei bis drei ppm beziffern lassen. Dieses Resultat der CWT-Analyse ist konsistent mit der zuvor durchgeführten CA der Rückwärtstrajektorien, wo der Einfluss der sommerlichen Hotspotregion des nordwestlichen mediterranen Raumes bereits in Form des konzentrationserhöhenden Clusters eins aufgetreten ist.

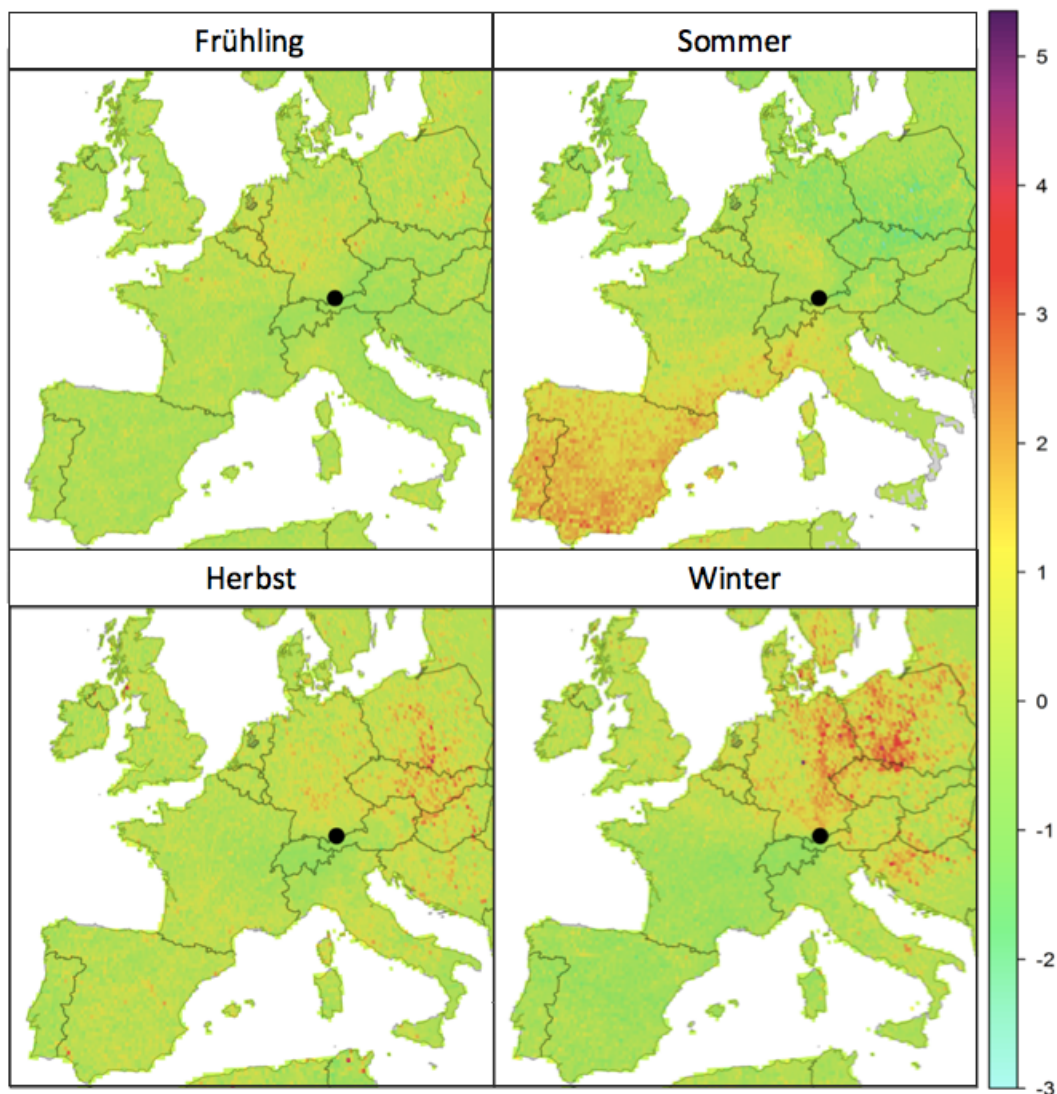


Abb. 5.13: Jahreszeitlich differenzierte Beiträge aus den farblich codierten Gitterzellen zu den saison- und trendbereinigten CO₂-Konzentrationen (in ppm), die während des Untersuchungszeitraums 2000–2015 an der Station Schneefernerhaus gemessen wurden
Quelle: Eigene Darstellung

5.1.3.3 Einzeljahres-Analysen

Dass es sich bei den Karten der Abbildungen 5.12 und 5.13 um Mittelwerte über den gesamten 16-jährigen Untersuchungszeitraum handelt und es von Jahr zu Jahr Abweichungen davon – in Abhängigkeit von der Emissionsintensität, die wiederum mit durch die Meteorologie gesteuert wird – gibt, verdeutlicht die jahresweise Erstellung der CWT-Karten (vgl. Abbildung 5.14). Harte und/oder lange Winter wie etwa in den Jahren 2005 und 2013 pausen sich genauso sichtbar in den konzentrationsgewichteten Quellbeitragsfunktionen durch wie heiße Sommer – z.B. der Hitzesommer 2003 – was einmal mehr die Funktionalität der Methodik sehr anschaulich bestätigt.

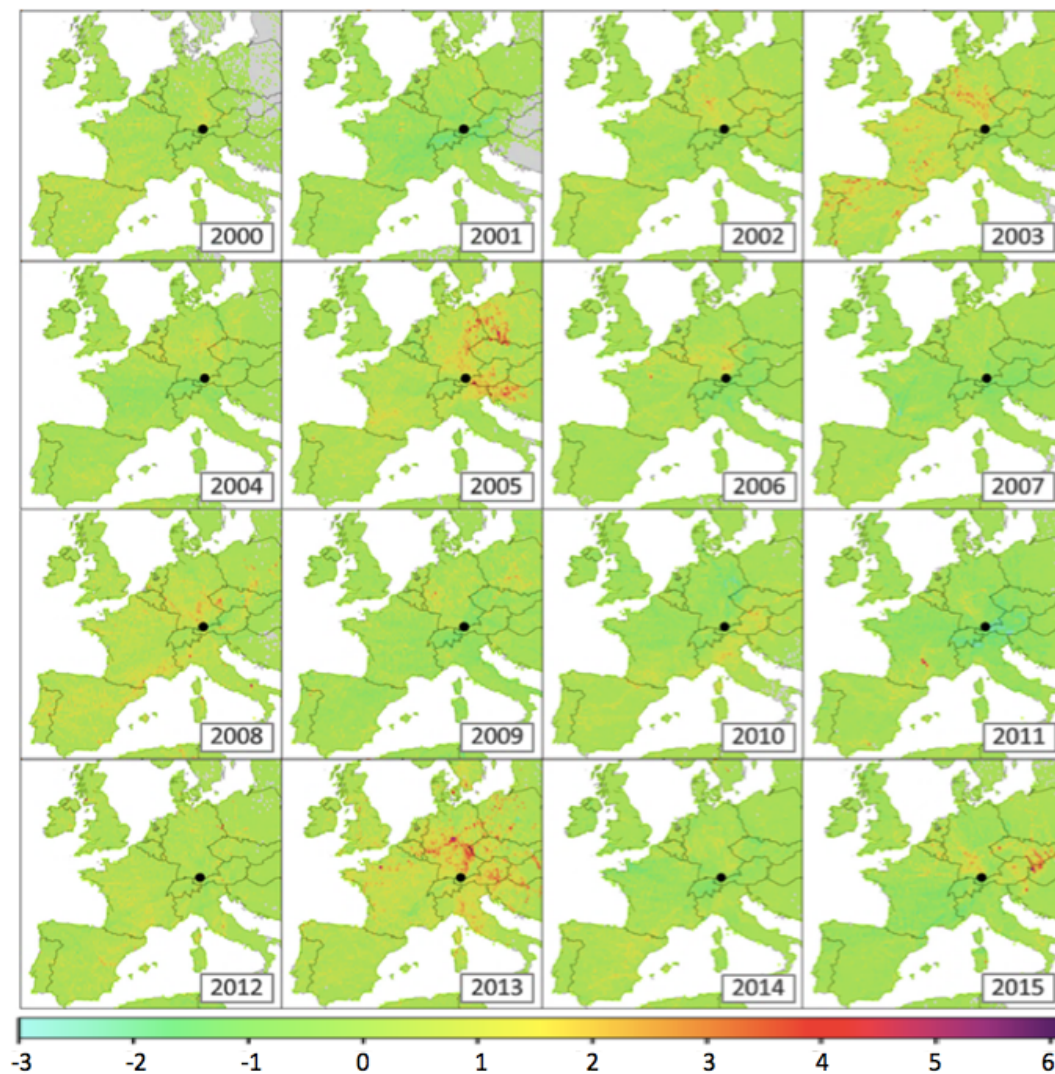


Abb. 5.14: Jährliche Beiträge aus den farbig codierten Gitterzellen zu den saison- und trendbereinigten CO₂-Konzentrationen (in ppm), die während des Untersuchungszeitraums 2000–2015 an der Station Schneefernerhaus gemessen wurden
Quelle: Eigene Darstellung

5.2 Einflüsse von Quellen und Senken auf die alpinen CO₂-Konzentrationen 2011–2015

Aufbauend auf den plausiblen Ergebnissen des ersten Teils der Arbeit, in dem die in Teilkapitel 4.2.3 erläuterte Methodik ihre Funktionalität zur Charakterisierung des CO₂-Haushalts im Einzugsgebiet der Umweltforschungsstation Schneesfernerhaus auf Basis der dortigen Messreihen überzeugend aufzeigt (s. Teilkapitel 5.1.3), erfolgt im zweiten Teil die Ausdehnung der Datenbasis über die Messstation UFS hinaus, da die Fähigkeit des Modells, Quellen und Senken zuverlässig zu identifizieren, in direktem Zusammenhang mit der Anzahl berücksichtigter Stationsdaten steht (Kaiser et al. 2007). Bei einer Ausweitung der Untersuchung auf zusätzliche Standorte der CO₂-Messung kann folglich mit einer verbesserten Modellgüte und erhöhter Reliabilität der Ergebnisse gerechnet werden (Apadula et al. 2003, Brankov et al. 1998).

Insbesondere die Integration von zusätzlichen Messstandorten mit (über-)regionaler Repräsentativität verspricht zuverlässigere Resultate der Identifikation potentieller Quell- und Senkengebiete, da diese Messreihen kaum lokal beeinflusst werden und zugleich neben regionalem auch ferntransportiertes CO₂ detektieren (Zhang et al. 2015). Aus diesen Gründen werden in diesem Teil der Arbeit die in Kapitel drei vorgestellten hochalpinen Observatorien Jungfrauojoch, Sonnblick und Plateau Rosa als weitere Rezeptorstandorte in die stationsübergreifende Kalkulation der konzentrationsgewichteten Trajektorienfelder mitaufgenommen. Basierend auf den Erkenntnissen des deutlich stärker frequentierten und nach allen Himmelsrichtungen besser abgedeckten Einzugsbereichs des kumulierten Footprints der Abbildung 4.4 kann davon ausgegangen werden, dass die Integration dieser drei zusätzlichen Observatorien die Reliabilität der CWT-Karten und ihre Aussagekraft in Bezug auf die Quell- und Senkenregionen mit Einfluss auf die Klimagasmessungen im Alpenraum signifikant erhöht.

Neben der räumlichen Veränderung des Einzugsgebiets durch die Integration der zusätzlichen Messstandorte findet im vorliegenden Kapitel der Analyse des alpinen CO₂-Haushalts auch eine zeitliche Modifikation der Untersuchungen statt, da die langen Rechenzeiten der FLEXPART-Partikeldispersionssimulationen (s. Teilkapitel 4.2.1.1) die Ausweitung der Datenbasis via zusätzlicher Rezeptorobservatorien nur einhergehend mit einer Verkürzung des Untersuchungszeitraums erlauben. Aus diesem Grund umfassen die Klimagashaushaltsuntersuchungen für die Messungen des Alpenraums in diesem und dem nachfolgenden Kapitel nur mehr die jüngsten fünf Jahre des zuvor 16-jährigen Analysezeitraums. Die Entscheidung für diesen fünfjährigen Untersuchungszeitraum der Jahre 2011–2015 geht aus dem Vergleich der

CWT-Karte der UFS als Rezeptorstandort für diesen verkürzten zeitlichen Rahmen (s. Abbildung 5.15) mit dem Pendant des 16-jährigen Zeitraums 2000–2015 (s. Abb. 5.12) hervor. Die Gegenüberstellung dieser beiden in ihren Grundstrukturen komparablen Karten bescheinigt auch dem kürzeren Analysezeitraum die ausreichende zeitliche Abdeckung der Jahr-zu-Jahr-Variationen in den Emissionsstrukturen des Einzugsgebiets. In der Konsequenz ist von einer Verbesserung der Reliabilität und Aussagekraft der Modellergebnisse bei einer Ausweitung der Datenbasis trotz der damit verbundenen Verkürzung des Untersuchungszeitraums auszugehen, sofern dieser den Mindestumfang von fünf Jahren nicht unterschreitet.

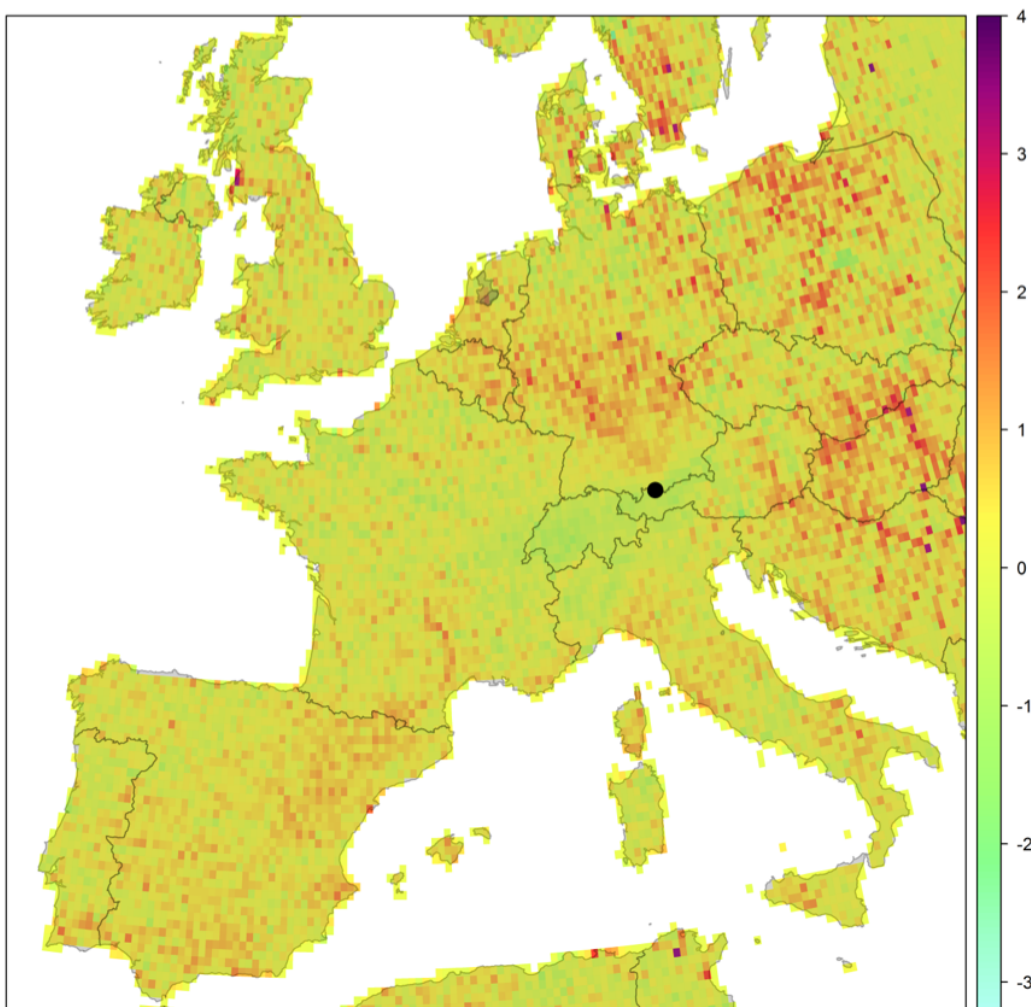


Abb. 5.15: Beiträge aus den farbig codierten Gitterzellen zu den saison- und trendbereinigten CO₂-Konzentrationen (in ppm), die während des Untersuchungszeitraums 2011–2015 an der Station Schneesfernerhaus gemessen wurden

Quelle: Eigene Darstellung

Für die Detektion relevanter Quellen und Senken mit Einfluss auf die an den Alpenobservatorien (UFS, JFJ, SON und PRO) gemessenen CO₂-Konzentrationen der Jahre 2011–2015 sowie deren zeitlicher Variabilität werden die Klimagasmessreihen der drei zusätzlichen Messstationen ebenso der Trend- und Saisonalitätsbereinigung nach Cleveland et al. (1990) unterworfen wie zuvor bereits diejenigen der UFS (s. Teilkapitel 4.1.2). Dadurch wird gewährleistet, dass die Ergebnisse der Analysen weder vom Klimawandelsignal noch vom Jahreszyklus verfälscht werden und sich stattdessen ausschließlich auf die kurzfristigen, von Witterung und Emissionsstärke der Quellen bzw. Senken abhängigen Anteile in den Messreihen beziehen. Eine Zusammenschau der derart gefilterten CO₂-Zweistundenmittelwerte zeigt Abbildung 5.16 unterteilt nach Stationen, Monaten und Tageszeiten. Allen vier Observatorien gemeinsam sind die nach ihrer Bereinigung um den Einfluss von Jahreszeiten und langjährigem Trend nachmittags in den Sommermonaten im Mittel um bis zu zwei ppm niedrigeren CO₂-Konzentrationen sowie die durchschnittlich um denselben Betrag höheren CO₂-Werte während der ersten Tageshälfte. Besonders ausgeprägt ist dieses Phänomen an der UFS, der niedrigsten der vier Stationen, was einmal mehr die Wichtigkeit möglichst hochgelegener Untersuchungsstandorte für die messreihenbasierte Analyse des regionalen CO₂-Haushalts unterstreicht und somit für die Wahl des alpinen Untersuchungsraums und seiner exponierten, weithin repräsentativen Messstationen spricht.

Parallel zu dieser statistischen Aufbereitung der Messdaten erfolgt die Berechnung der zehntägigen Zentroidpfade der rückwärts in der Zeit gerichteten Partikeldispersionssimulation mit FLEXPART für jeden der neuen Rezeptorstandorte individuell, aber bezüglich der Einstellungen des Modells in Analogie zur Simulation der Rückwärtstrajektorien für die UFS (s. Teilkapitel 4.2.1), sodass den in den folgenden drei Unterkapiteln präsentierten Untersuchungsergebnissen insgesamt über 85.000 FLEXPART-Partikeldispersionsrechnungen zugrunde liegen. Diese werden in Beziehung zu den jeweils zeitgleich aufgezeichneten CO₂-Konzentrationen der Rezeptorobservatorien gesetzt und der CWT-Analyse unterzogen.

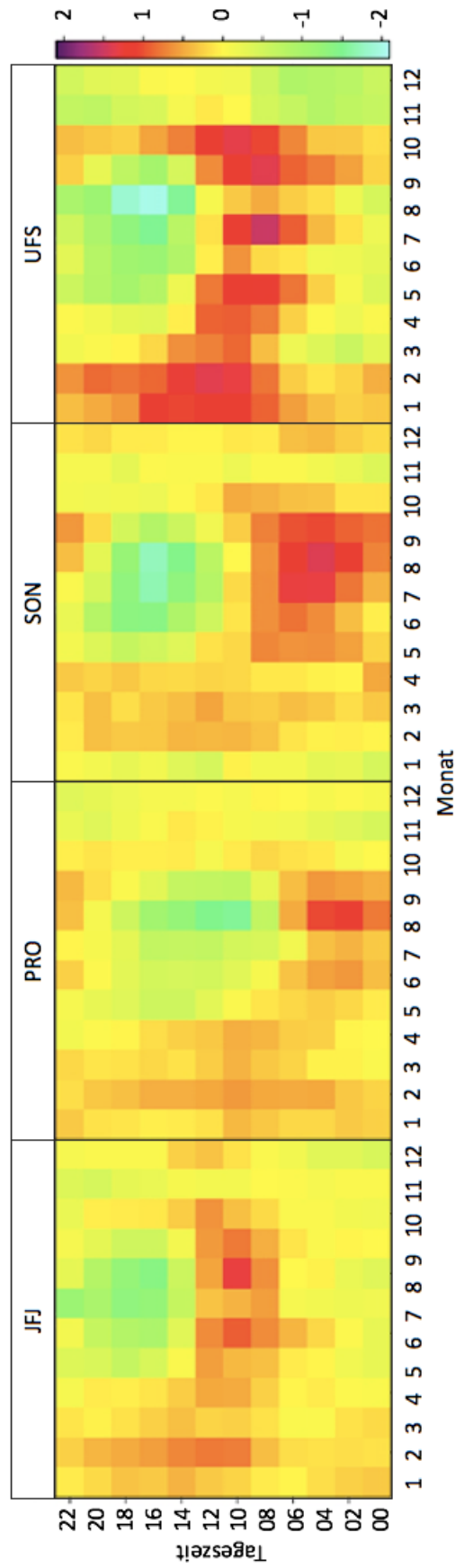


Abb. 5.16: Monatlicher Verlauf (Zeilen) der Tagesgänge (Spalten) der mittleren saison- und trendbereinigten CO₂-Konzentrationen (in ppm), die 2011–2015 an den vier hochalpinen Observatorien Jungfraujoch (JFJ), Plateau Rosa (PRO), Sonnblick (SON) und Schneefernerhaus (UFS) gemessen wurden
Quelle: Eigene Darstellung

5.2.1 Analyse des gesamten Untersuchungszeitraums

Das Ergebnis der Kombination von Zentroidpfaden der stationsspezifisch berechneten FLEXPART-Partikeldispersionsimulationen und den zur jeweiligen Ankunftszeit der Rückwärtstrajektorien dort gemessenen CO₂-Konzentrationen nach ihrer Saisonalitäts- und Trendbereinigung zeigt Abbildung 5.17 in Form der CWT-Karten für den gesamten Untersuchungszeitraum der Jahre 2011–2015 differenziert nach den vier Receptorobservatorien. Demnach sind für hohe CO₂-Konzentrationen am Schneefernerhaus und am Sonnblick Observatorium insbesondere Regionen Osteuropas sowie Mitteleuropas nördlich der Alpen verantwortlich, wohingegen sich hohe CO₂-Messwerte an den Observatorien Jungfrauoch und Plateau Rosa vor allem auf den Einfluss aus Gebieten südlich der Alpen zurückführen lassen. Deutlich wird hierbei auch die Höhendifferenz zwischen den Messstandorten. Diese bedingt, dass sich das 450–830 m niedriger gelegene Observatorium der UFS seltener im Einflussbereich der unteren, freien Troposphäre befindet und somit durchschnittlich einen höheren CO₂-Gehalt der erfassten Luftmassen aufzeichnet. Demgegenüber verzeichnen die Messungen an den drei über 3.000 m hoch gelegenen Messstandorten JFJ, PRO und SON häufiger die gut durchmischte Hintergrundkonzentration des Kohlendioxidgehalts der freien Troposphäre und detektieren nicht die Quell- oder Senkenbeiträge des unmittelbaren Einzugsgebiets. Insgesamt spiegelt sich sowohl die Höhenlage als auch die Position der Messstandorte innerhalb des alpinen Kernuntersuchungsgebiets in den stationsspezifischen CWT-Karten wider, da in stärker frequentierten Regionen ihres Footprints (s. Abb. 4.3) Quellen und Senken mit Einfluss auf die Messwerte der Station zuverlässiger identifiziert und somit stärker eingefärbt werden. Diese unterschiedliche Abdeckung des Untersuchungsgebiets entsprechend der Lage der Messstandorte, die sich in Abbildung 5.17 sehr anschaulich niederschlägt, belegt die Sinnhaftigkeit und Notwendigkeit der zuvor beschriebenen Ausweitung der Datenbasis auf Messreihen zusätzlicher Observatorien. Denn nur eine Kombination der Einzugsgebiete aller vier hochalpinen Messstandorte stellt sicher, dass sämtliche Emittenten, die die Klimagasmessungen des Alpenraums beeinflussen, erfasst werden.

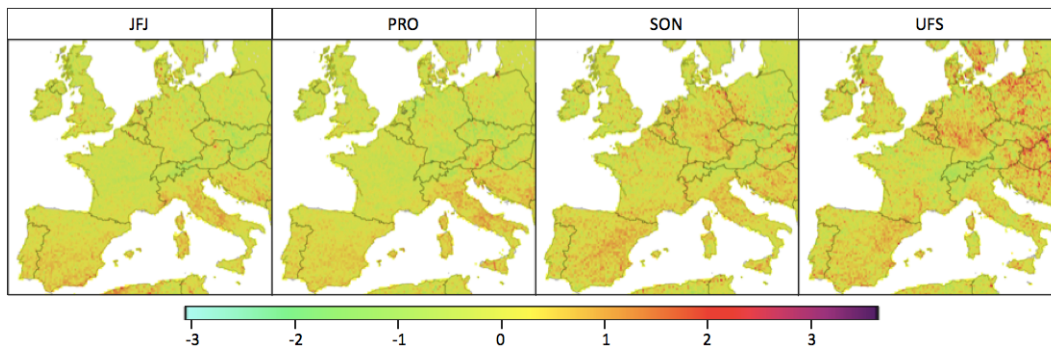


Abb. 5.17: Beiträge aus den farbig codierten Gitterzellen zu den saison- und trendbereinigten CO_2 -Konzentrationen (in ppm), die während des Untersuchungszeitraums 2011–2015 an den Stationen Jungfrauoch (JFJ), Plateau Rosa (PRO), Sonnblick (SON) bzw. Schneefernerhaus (UFS) gemessen wurden

Quelle: Eigene Darstellung

Abbildung 5.18 zeigt das Ergebnis der kumulativen Berücksichtigung der CO_2 -Konzentrationen und Partikeldispersionssimulationen aller vier hochalpinen Observatorien in Gestalt der für die Standorte gemeinsam berechneten konzentrationsgewichteten Trajektorienfelder. Die dadurch erzielte Ausweitung der Datenbasis resultiert in einer verbesserten Abdeckung des Untersuchungsgebiets, wie die Detektion der CO_2 -Quellregionen ringsum die Zentralalpen in der Karte von Abbildung 5.18 veranschaulicht. Eine Ausnahme bildet Frankreich im Westen der Alpen, das seit Anfang der 2000er Jahre aus der Kohleförderung ausgestiegen ist und heute die sehr viel CO_2 -ärmere, jedoch stark risikobehaftete Atomenergie als Hauptenergieträger nutzt. Daneben tritt insbesondere der Raum um den Alpenhauptkamm als wichtigste großflächige CO_2 -Senke Mitteleuropas über die Jahre gemittelt auf. Stammen Luftmassen aus dieser zentralen Region inmitten des Untersuchungsgebiets, verursachen sie bei ihrer Aufzeichnung an den Messstandorten gemittelt über die Jahre 2011–2015 eine signifikante Reduktion des CO_2 -Konzentrationsniveaus.

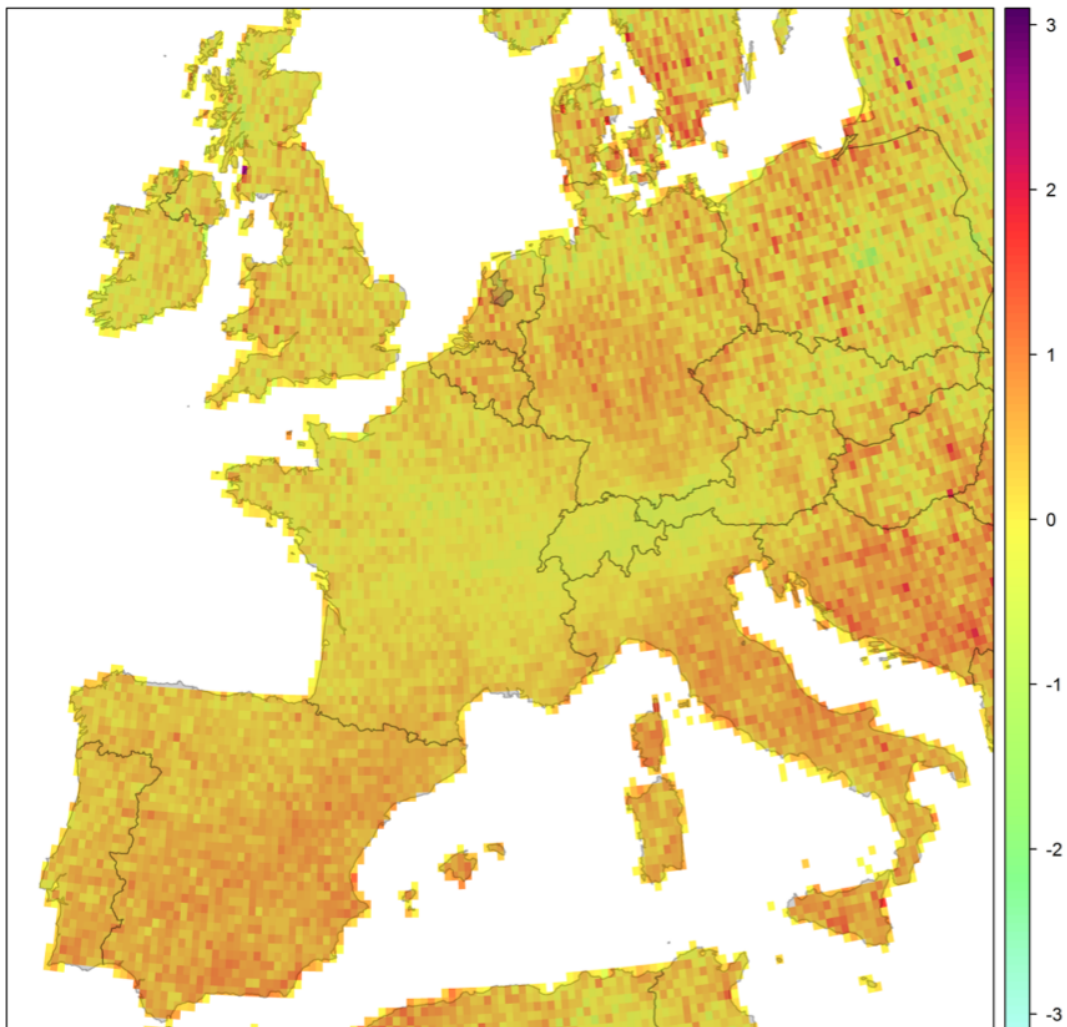


Abb. 5.18: Beiträge aus den farbig codierten Gitterzellen zu den saison- und trendbereinigten CO₂-Konzentrationen (in ppm), die während des Untersuchungszeitraums 2011–2015 an den hochalpinen Stationen Jungfraujoch, Plateau Rosa, Sonnblick und Schneefernerhaus gemessen wurden
Quelle: Eigene Darstellung

5.2.2 Saisonale Analysen

Die individuellen, sich ergänzenden Charakteristiken der einzelnen Einzugsgebiete zeigen sich nicht nur über das Jahresmittel hinweg, sondern sind besonders in den konzentrationsgewichteten Trajektorienfeldern der einzelnen Jahreszeiten sichtbar. In den saisonal differenzierten Pendanten zu den Karten der Abbildung 5.17 zeigt sich das besonders deutlich (s. Abb. 5.19).

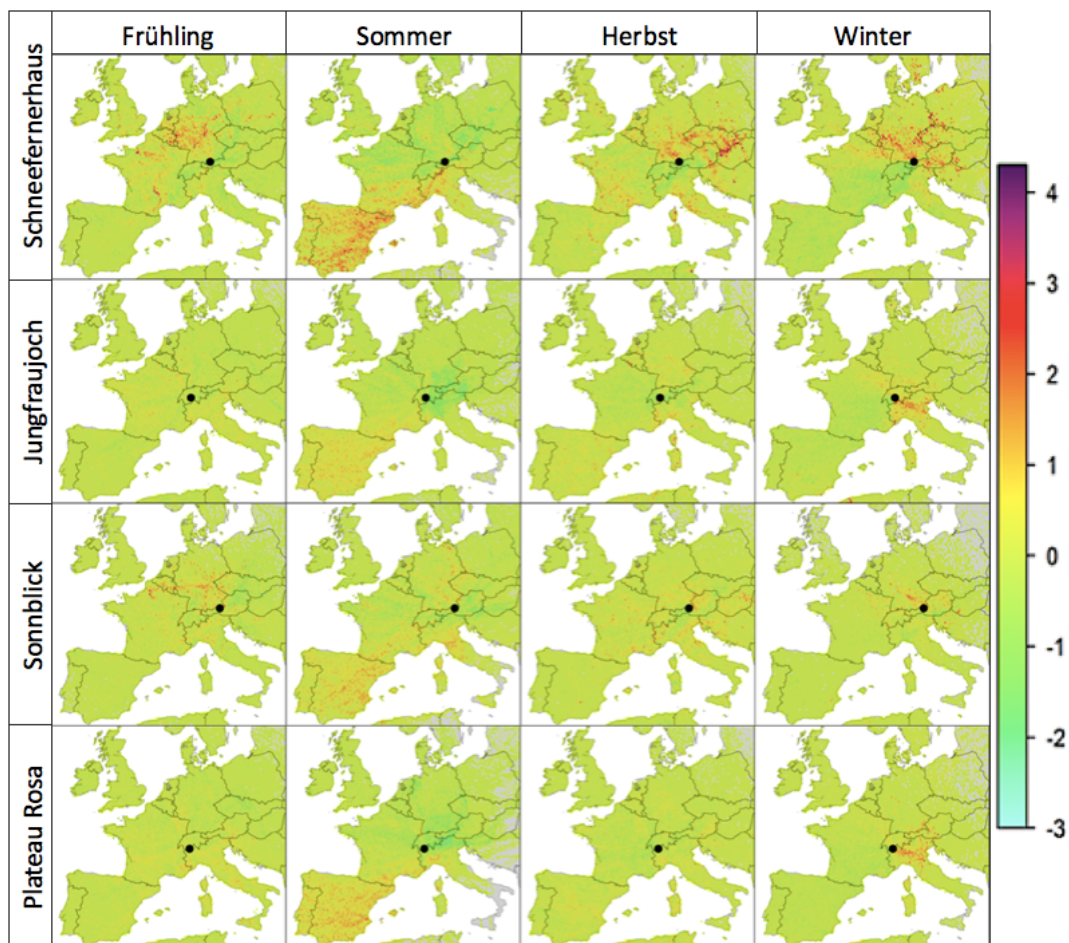


Abb. 5.19: Nach Jahreszeiten und Stationen differenzierte Beiträge aus den farblich codierten Gitterzellen zu den saison- und trendbereinigten CO₂-Konzentrationen (in ppm), die während des Untersuchungszeitraums 2011–2015 an den Stationen Jungfraujoch, Plateau Rosa, Sonnblick bzw. Schneefernerhaus gemessen wurden
Quelle: Eigene Darstellung

So repetiert die erste Zeile der Abbildung 5.19 den aus den Resultaten der Analysen des 16-jährigen Untersuchungszeitraumes (2000–2015) bereits bekannten positiven Einfluss auf die CO₂-Konzentrationen des Schneefernerhaus aus Nordost (Holz- und Kohlefeuerung während des Winters), der sich schon im Herbst kontinentalwärts ankündigt, sowie aus Südwest (hitzebedingte Feuer in der nordwestlichen Mittelmeer-

region im Sommer). Der konzentrationserhöhende Einfluss aus der genannten Mittelmeerregion südwestlich der Messstation zeigt sich auch an den Stationen Jungfrau-joch, Sonnblick und Plateau Rosa über die Sommermonate, während die Alpenregion selbst zu dieser Jahreszeit sehr deutlich zu CO₂-Reduktionen in den Messungen beiträgt (s. Zeilen zwei, drei bzw. vier in Abbildung 5.19). Im Winter stammen hohe CO₂-Messwerte an den Observatorien Jungfrau-joch und Plateau Rosa allerdings vor allem aus der industriell geprägten Region Norditaliens, die wiederum vom Schneefernerhaus auf der Nordseite der Alpen nicht adäquat erfasst werden kann. Dies verdeutlicht einmal mehr den Mehrwert zusätzlicher alpiner Receptorobservatorien für eine fundierte CO₂-Haushaltsbilanzierung des Alpenraums. Erst durch die Integration mehrerer Messstationen und ihrer jeweiligen charakteristischen Footprints kann das Untersuchungsgebiet valide in den Quellherkunftsanalysen des Kohlendioxids repräsentiert werden.

In Analogie dazu weisen auch die saisonal differenzierten Karten der CO₂-Beiträge aus den Gitterzellen des kumulierten Einzugsgebiets eine höhere Reliabilität auf, mit der insbesondere im Winter einzelne Emissions-Hotspotregionen zuverlässig ausgemacht werden können (s. Abb. 5.20). Im Winter finden sich diese vor allem nördlich und östlich der Alpen und deuten auf CO₂-Emissionen durch die Holz- und Kohlefeuerung hin, wohingegen um durchschnittlich zwei ppm erhöhte CO₂-Messwerte während des Sommers hauptsächlich bei Luftmassenadvektion aus der Mittelmeerregion südwestlich der Alpen sowie aus Zentralitalien auftreten.

Der positive Effekt auf die alpinen CO₂-Konzentrationen aus den Emissionen der Verfeuerung fossiler Brennstoffe, der sich im Winter auf Werte von bis zu vier ppm beläuft, ist im Herbst – wenn auch weniger stark – bereits festzustellen und rührt zu dieser Jahreszeit aus weiter landeinwärts gelegenen Regionen Osteuropas. Diese winterlich besonders dominanten Emissionsregionen umfassen Teile des Nordostens Deutschlands sowie weite Gebiete (West-)Polens und Osteuropas. Angesichts der Tatsache, dass sich die größten Braunkohleabbaugebiete Europas in genau diesen Regionen befinden, verweist dies auf den erheblichen Einfluss der Braunkohleemissionen auf die atmosphärischen CO₂-Konzentrationen – selbst an den hochalpinen Observatorien, die sich in über 500 km Luftlinie Entfernung auf den Gipfeln der höchsten Berge Europas befinden. Mittels den hier erstellten CWT-Karten gelingt es, den Einfluss der Emissionen von Braunkohleförderung und -verstromung auf die alpinen CO₂-Konzentrationen aufzuzeigen, die ansonsten vor allem mittels flugzeuggetragener Fernerkundungsmessgeräte zur Detektion von Klimagasemissionen gemessen werden (u.a. Gerilowski et al. 2011 & Krings et al. 2011).

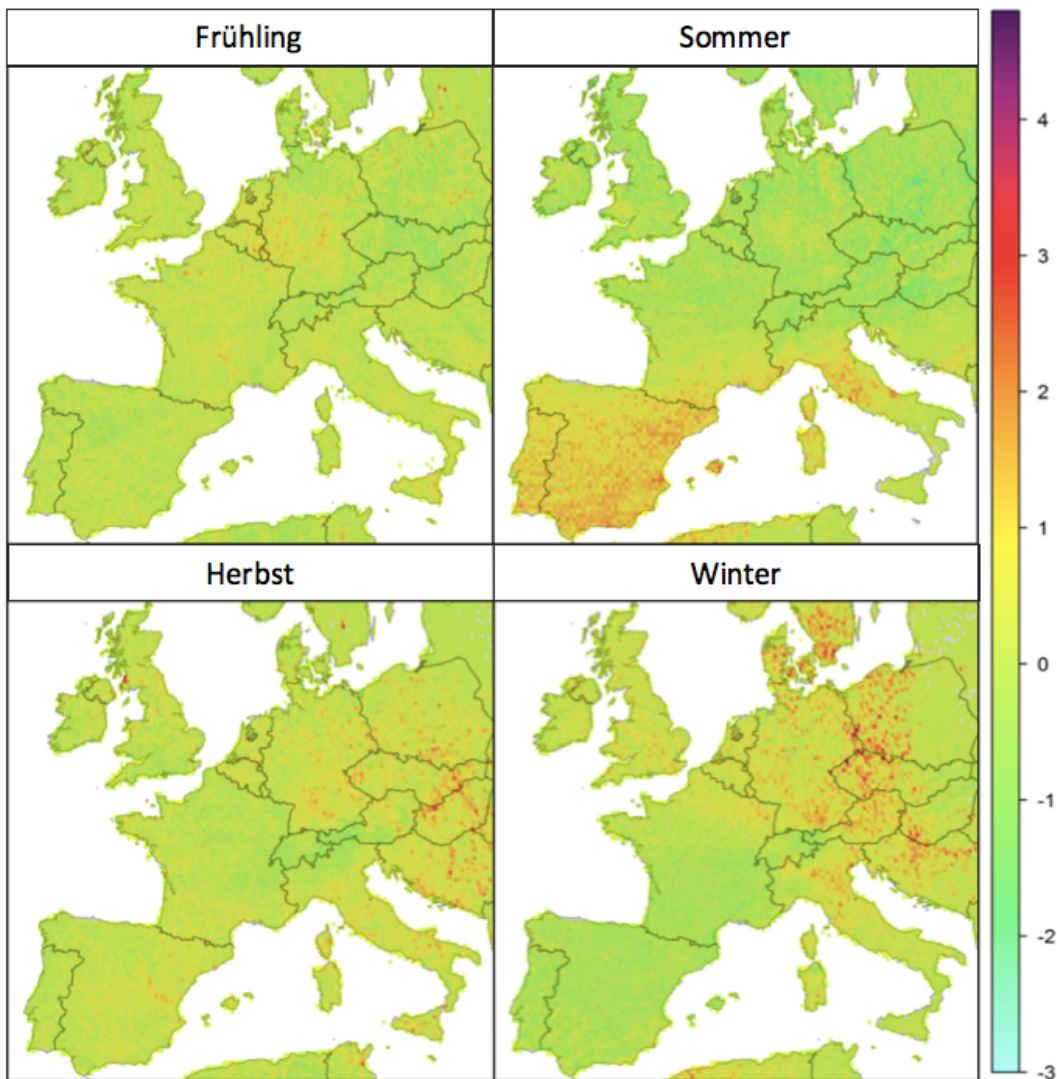


Abb. 5.20: Jahreszeitliche Beiträge aus den farbig codierten Gitterzellen zu den saison- und trendbereinigten CO₂-Konzentrationen (in ppm), die während des Untersuchungszeitraums 2011–2015 an den Stationen Jungfrauojoch, Plateau Rosa, Sonnblick und Schneefernerhaus gemessen wurden

Quelle: Eigene Darstellung

Der im Sommer an den hochalpinen Standorten beobachtete Anstieg des CO₂-Gehalts stammt dagegen aus dem nordwestlichen Mittelmeerraum, wo in dieser Jahreszeit häufig hitzebedingte Brände ausbrechen. Das dabei freigesetzte CO₂ kann bei sommerlicher Luftmassenadvektion aus dieser Region zu einer Erhöhung der CO₂-Messwerte um durchschnittlich bis zu drei ppm an den Rezeptorstandorten führen. Im Frühjahr wiederum werden einige, vergleichsweise weniger beitragsstarke Emissionshotspots in dicht besiedelten Gebieten Westdeutschlands (Rhein-Ruhr-Gebiet), Belgiens und der Niederlande lokalisiert. Die Fahrzeug- und Kraftwerksemissionen aus diesen Regionen treten ausschließlich in dieser Saison zu Tage, wenn die Verfeuerung fossiler Brennstoffe (Winter) und Waldbrände (Sommer) keine Rolle spielen,

was darauf hindeutet, dass die beiden letztgenannten Emittenten die Hauptquellen für erhöhte CO₂-Konzentrationen an den hochalpinen Messstationen sind. Andere große europäische Metropolregionen wie Paris oder London liegen möglicherweise zu weit von den vier hochalpinen Observatorien entfernt, um einen signifikanten Nachweis ihrer Emissionen zu ermöglichen, da sich ihr Beitrag über die weite Entfernung (und insbesondere über den Atlantik im Falle Londons) verdünnt. Allen Jahreszeiten gemein ist die kontinuierliche Einordnung der zentralen Untersuchungsregion um den Alpenhauptkamm als Kohlendioxidsenke, wonach die alpine Kernregion den flächenmäßig größten negativen Einfluss auf die CO₂-Konzentrationen Mitteleuropas über alle Jahreszeiten hinweg aufweist.

Insgesamt zeichnen diese saisonal differenzierten Analysen des alpinen CO₂-Haushalts auf Basis der Kombination der Messreihen der Stationen UFS, JFJ, PRO und SON ein plausibles Bild der jahreszeitlich relevanten CO₂-Emittenten und -Absorber und unterstreichen dabei zugleich die Relevanz saisonaler Differenzierungen der Quellherkunftsuntersuchungen des gemessenen Kohlendioxids. Denn nur in der saisonalen Analyse werden die jahreszeitlich variierenden Quell- und Senkenregionen visibel, die sich in den über den gesamten fünfjährigen Untersuchungszeitraum gemittelten Analysen (s. Abb. 5.20) zwar ebenfalls niederschlagen, nicht aber in ihrem Auftreten im Jahresverlauf unterscheid- und damit identifizierbar werden. Die insbesondere beim Kohlendioxid stark ausgeprägten saisonalen Variationen der Emittenten und Absorber zeigen sich erst in den hier vorgestellten jahreszeitlichen Differenzierungen der CWT-Analysen und ermöglichen in ihrer Gesamtheit eine schlüssige Charakterisierung der relevanten Regionen Europas mit Einfluss auf die alpinen CO₂-Konzentrationen.

5.2.3 Einzeljahres-Analysen

In Analogie zu Abbildung 5.14 zeigt die nachfolgende Abbildung 5.21 die für jedes der fünf Jahre (2011–2015) separat durchgeführte CWT-Kalkulation auf Basis des über alle vier Observatorien ausgedehnten Datensatzes der Kombination aus den Residuen der Messreihen und den Rückwärtstrajektorien der FLEXPART-Partikeldispersionsrechnungen. Besonders eindrücklich bildet die Methode hier die hohen CO₂-Emissionen bedingt durch den strengen Winter 2013 ab, der in diesem Jahr erst nach dem gemäß meteorologischer Unterteilung bereits zu den Frühlingsmonaten zählenden März mit Minustemperaturen von bis zu -20 °C und viel Schnee ein Ende hatte. Die durch diese Witterung bedingten, verstärkten sowie länger andauernden Emissionen aus der Holz- und Kohlefeuerung visualisiert die Methodik für

die Schwerpunktregion Mitteleuropa zuverlässig. Ebenso gelingt es dem methodischen Ansatz andererseits auch den darauffolgenden besonders milden Winter 2014 mit seinen witterungsbedingt sehr viel niedrigeren CO₂-Emissionen aus der reduzierten Verbrennung fossiler Energieträger wiederzugeben, wie in der vierten Karte von links der Abbildung 5.21 zu sehen ist. Die reliable Rekonstruktion der Jahr-zu-Jahr-Variationen in den CO₂-Emissionen anhand der jahresweisen CWT-Analysen der Abbildung 5.21 unterstreicht anschaulich die Funktionalität der Methodik, die durch Witterung und Emissionsstärke beeinflussten, kurzfristig variierenden Anteile in den Messdaten der hochalpinen Observatorien auf ihre Herkunftsregionen zurückzuführen. Zusammenfassend bescheinigt dies der hier angewandten Methode die Fähigkeit, sowohl saisonale (s. Kapitel 5.2.2) als auch jahresweise Abweichungen der CO₂-Emissionen aus Gebieten mit Einfluss auf den Kohlendioxid-Haushalt der alpinen Untersuchungsregion zu identifizieren.

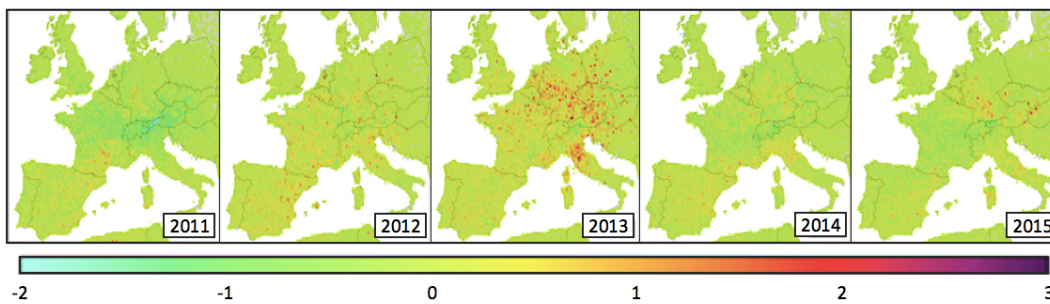


Abb. 5.21: Jährliche Beiträge aus den farbig codierten Gitterzellen zu den saison- und trendbereinigten CO₂-Konzentrationen (in ppm), die während des Untersuchungszeitraums 2011–2015 (v.l.n.r.) an den Stationen Jungfraujoch, Plateau Rosa, Sonnblick und Schneefernerhaus gemessen wurden

Quelle: Eigene Darstellung

5.3 Einflüsse von Quellen und Senken auf die alpinen CH₄-Konzentrationen 2011–2015

Die Untersuchung des CO₂-Haushalts auf Basis atmosphärischer Messreihen, deren Resultate im vorherigen Kapitel detailliert vorgestellt wurden, stellt aufgrund der Vielzahl vorhandener Quellen und Senken des Kohlendioxids, dessen Konzentration durch biogene wie anthropogene Emittenten und Absorber kontinuierlich verändert wird, eine besondere Herausforderung dar. Erfüllt ein Modell diese komplexe Aufgabe plausibel, ist die verhältnismäßig einfache Übertragung auf andere Klimagase ähnlicher Charakteristika wie etwa Methan (s. Abb. 5.22) naheliegend, um den Wissensfortschritt aus dieser Arbeit auszubauen. Aus diesem Grund widmet sich dieses Kapitel mit seinen folgenden Teilkapiteln der Untersuchung des CH₄-Haushalts für den Alpenraum, wobei sowohl Untersuchungsregion und –zeitraum als auch das methodische Vorgehen in Analogie zu den vorherigen CO₂-Haushaltscharakterisierungen (s. Kapitel 5.2) beibehalten werden. Die einzig notwendige Modifikation umfasst die Berücksichtigung der CH₄-Messreihen anstelle der CO₂-Messreihen der Observatorien. Wie zuvor die CO₂-Zeitreihen werden nun dementsprechend die CH₄-Messwerte der vier hochalpinen Stationen eingangs der Trend- und Saisonalitätsbereinigung nach Cleveland et al. (1990) unterzogen, um in den anschließenden Analysen explizit den von Witterung und Emissionsintensität beeinflussten Anteil in den Messungen zu untersuchen und weder den Effekt von Klimawandel noch biogenem Jahreszyklus abzubilden.

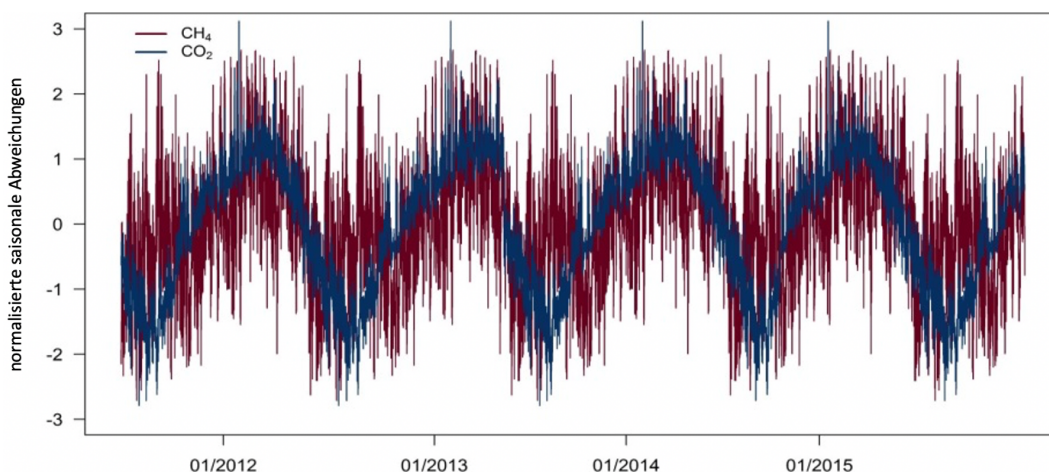


Abb. 5.22: Normalisierte saisonale Anomalien der beiden Klimagase CO₂ und CH₄ gemessen von 2011–2015 an der Umweltforschungsstation Schneefernerhaus

Quelle: Eigene Darstellung

Das Ergebnis der so aufbereiteten CH_4 -Zweistundenmittelwerte zeigt Abbildung 5.23 unterteilt nach Stationen, Monaten und Tageszeiten. Im Vergleich mit dem Pendant der Abbildung für die gefilterten CO_2 -Messwerte der vier Stationen (s. Abb. 5.16) zeigt sich für die aufbereiteten CH_4 -Konzentrationen der Abbildung 5.23 keine scharfe, stationsübergreifende Differenzierung positiver versus negativer Anomalien bei bestimmten Tages- und/oder Jahreszeiten. Es lässt sich folglich keine klare, für alle vier Stationen gültige Aussage zu tages- bzw. jahreszeitlichen Phänomenen der in die Analyse eingehenden CH_4 -Konzentrationen aufstellen. Auffällig ist in Abbildung 5.23 jedoch, dass an den südwestlich des alpinen Kernuntersuchungsgebiets gelegenen Observatorien Jungfrauoch und Plateau Rosa nachmittags in den Sommermonaten um bis zu zehn ppb erhöhte CH_4 -Konzentrationen gegenüber dem um Saisonalität und langjährigen Trend bereinigten Mittelwert aufgezeichnet werden. Eine mögliche Erklärung für diese Anomalien findet sich in den Reisfeldern der Poebene, deren vor allem im Sommer freigesetztes Methan bei Südwinden die Messstandorte JFJ und PRO erreicht.

Die in ihren Mittelwerten nach Tageszeit, Monaten sowie Stationen in Abbildung 5.23 differenziert dargestellten, saison- und trendbereinigten CH_4 -Messwerte der vier Untersuchungsstationen werden für die Analysen des alpinen CH_4 -Haushalts mit den Zentroidpfaden der für die Jahre 2011–2015 simulierten FLEXPART-Partikeldispersion in Beziehung gesetzt. Ihren Ausdruck findet die Kombination der Residuen aus den Messreihen und den Rückwärtstrajektorien jeweils für alle vier Standorte in den CWT-Analysen, deren Resultate in den nachfolgenden Unterkapiteln dargelegt werden.

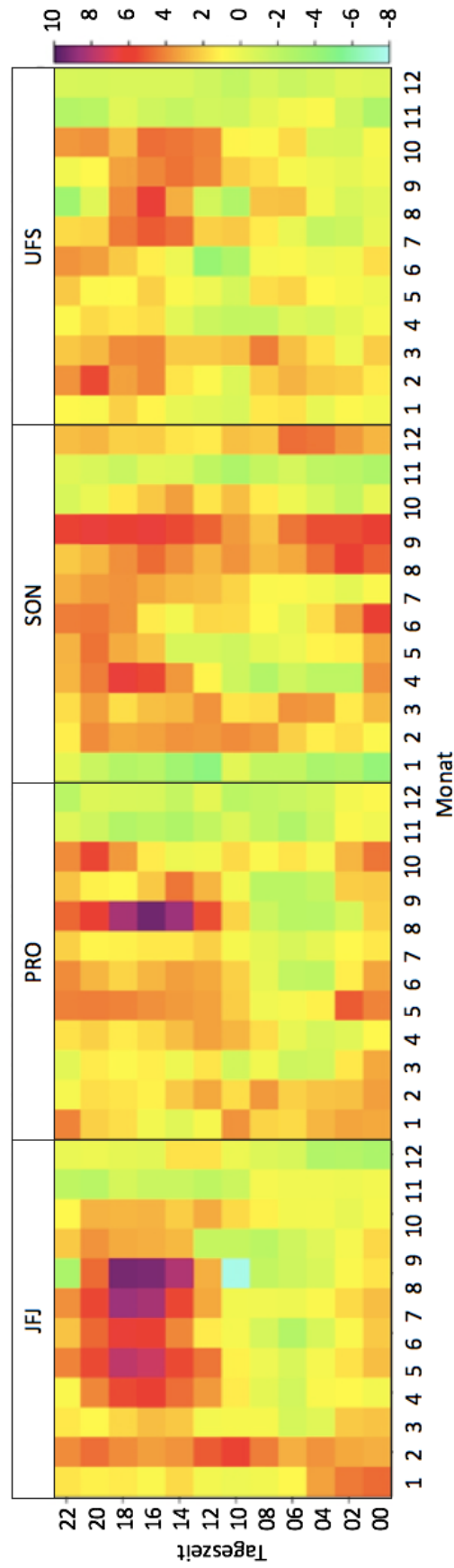


Abb. 5.23: Monatlicher Verlauf (Zeilen) der Tagesgänge (Spalten) der mittleren saison- und trendbereinigten CH₄-Konzentrationen (in ppb), die 2011–2015 an den vier hochalpinen Observatorien Jungfraujoch (JFJ), Plateau Rosa (PRO), Sonnblick (SON) und Schneefernerhaus (UFS) gemessen wurden
Quelle: Eigene Darstellung

5.3.1 Analyse des gesamten Untersuchungszeitraums

Die stationsspezifische CWT-Kalkulation auf Basis der an den jeweiligen Rezeptorstandorten gemessenen CH_4 -Residuen und den zeitgleich dort ankommenden Rückwärtstrajektorien aus den FLEXPART-Partikeldispersionssimulationen gibt Abbildung 5.24 wieder. Wie bereits in der entsprechenden Abbildung für die CO_2 -Konzentrationen der Stationen (s. Abb. 5.17) zeigen sich auch in den konzentrationsgewichteten Trajektorienfeldern für die CH_4 -Messwerte die stationsspezifischen Frequentierungen des alpinen Untersuchungsgebiets. Während die Observatorien JFJ und PRO Quellregionen des Methans nördlich, insbesondere aber südlich der Alpen lokalisieren, werden Emittenten im Norden und Osten Mitteleuropas vor allem von Sonnblick und Schneefernerhaus aus erfasst. Dabei werden – auch kleinräumigere – Hotspotregionen von mehreren Stationen aus übereinstimmend in deren Karten abgebildet, was die Zuverlässigkeit dieser Quellidentifizierung erhöht. Allen vier CWT-Karten gemein ist unabhängig von ihrem individuellen Footprint die übereinstimmende Deklaration des Südwesten Europas als großflächige CH_4 -Senke. So führten den Karten der Abbildung 5.24 zufolge Luftmassen von der iberischen Halbinsel bei ihrer Aufzeichnung an den Alpenobservatorien zu Reduktionen der dort gemessenen CH_4 -Konzentrationen um durchschnittlich rund zehn ppb gemittelt über den gesamten fünfjährigen Untersuchungszeitraum. Demgegenüber verursachten Luftmassentransporte insbesondere aus dem Nordosten Mitteleuropas während der Jahre 2011–2015 bei ihrer Ankunft und Erfassung an den hochalpinen Standorten Erhöhungen der Methan-Messwerte um bis zu 20 ppb.

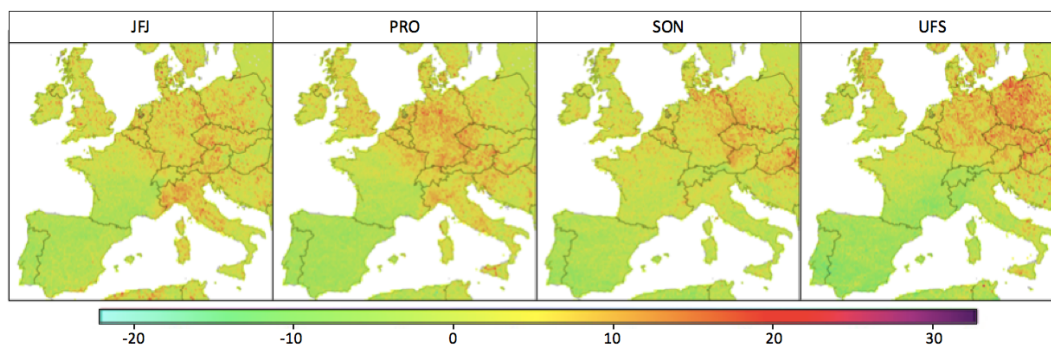


Abb. 5.24: Beiträge aus den farbig codierten Gitterzellen zu den saison- und trendbereinigten CH_4 -Konzentrationen (in ppb), die während des Untersuchungszeitraums 2011–2015 an den Stationen Jungfraujoeh (JFJ), Plateau Rosa (PRO), Sonnblick (SON) bzw. Schneefernerhaus (UFS) gemessen wurden

Quelle: Eigene Darstellung

Dieses Bild der Zweiteilung des Einzugsgebietes in eine südwestliche CH₄-Senkenregion einerseits, die Portugal, Spanien und Südfrankreich umfasst, sowie CH₄-Emitenten vom Nordwesten (England) bis nach Süden (Italien) mit Schwerpunkten im Nordosten Mitteleuropas (Deutschland, Dänemark, Ostösterreich, Polen, Tschechien, Ungarn), das sich in den stationsspezifischen CWT-Karten der Abbildung 5.24 bereits abzeichnet, konkretisiert sich in der standortübergreifenden Karte der Abbildung 5.25. Die CWT-Karte der Kombination aller Stationsdaten und Rückwärts-trajektorien über den Gesamtzeitraum 2011–2015 manifestiert das starke Nordost-Südwest-Gefälle in der Beeinflussung der alpinen CH₄-Konzentrationen, wonach Erhöhungen der saison- und trendbereinigten Messwerte um 15 bis über 20 ppb bei Luftmassenadvektion besonders aus dem Nordosten Mitteleuropas auftreten, während Luftmassen aus südwestlicher Richtung einen negativen Einfluss auf die Messwerte in Form von Reduktionen um durchschnittlich 15 ppb bedingen. Eine Ausnahme dieser Nordost-Südwest-Differenzierung bildet einzig der Alpenraum, dessen Wirkung als relative CH₄-Senke trotz der umliegenden Quellregionen deutlich hervortritt. Demnach stellt die alpine Kernzone für beide untersuchten Klimagase (CO₂ und CH₄) über den Untersuchungszeitraum gemittelt eine signifikante Senkenregion inmitten des teilweise emissionsintensiven Europas dar und bedarf daher nicht zuletzt aus der Klimaschutzperspektive eines besonderen Schutzstatus.

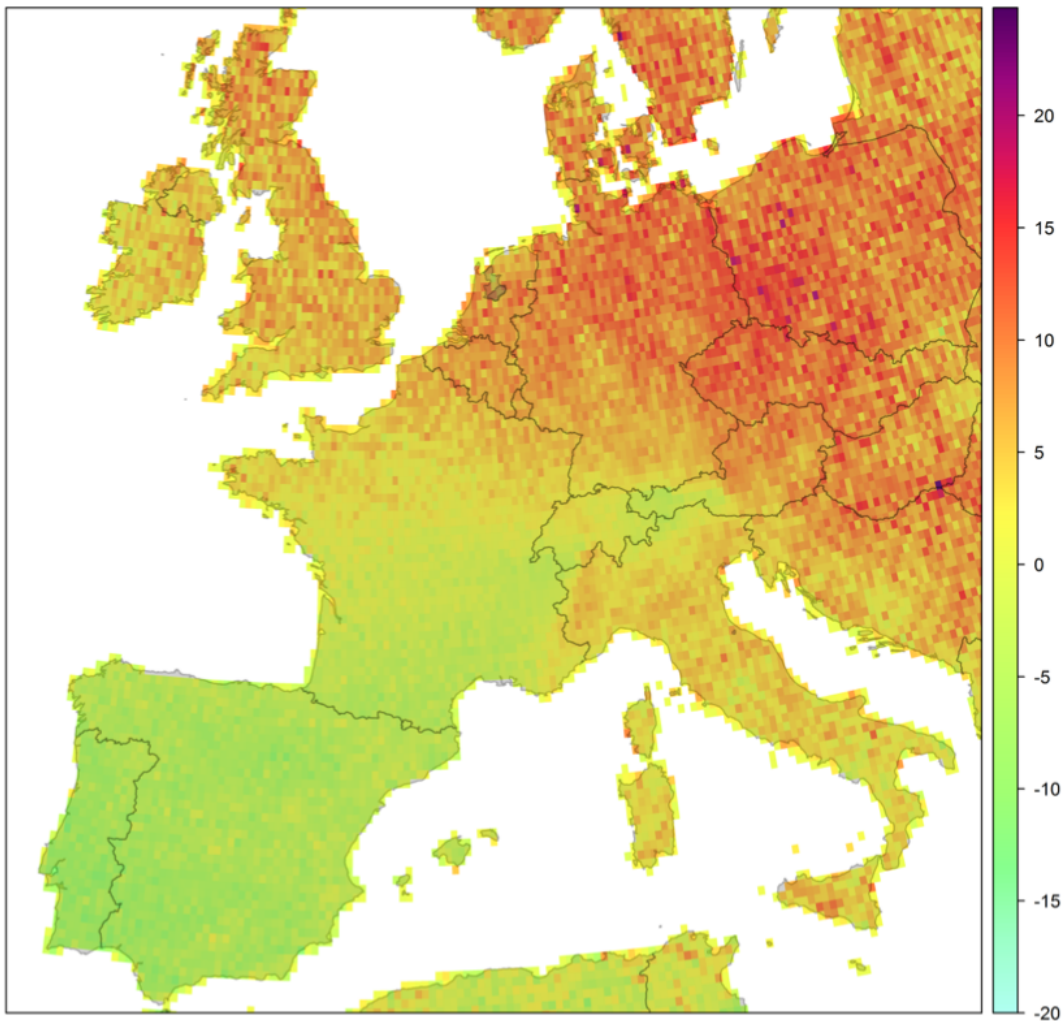


Abb. 5.25: Beiträge aus den farbig codierten Gitterzellen zu den saison- und trendbereinigten CH_4 -Konzentrationen (in ppb), die während des Untersuchungszeitraums 2011–2015 an den hochalpinen Stationen Jungfraujoch, Plateau Rosa, Sonnblick und Schneefernerhaus gemessen wurden
Quelle: Eigene Darstellung

5.3.2 Saisonale Analysen

Die nordöstlich-südwestliche Zweiteilung in Quellen und Senken behält ihre Gültigkeit auch für die saisonale Betrachtung des Einflusses aus den Gitterzellen auf die alpinen CH_4 -Konzentrationen bei. Zwar zeigt sich in den jahreszeitlich und stationsspezifisch berechneten CWT-Karten der Abbildung 5.26 verstärkt der Effekt unterschiedlich stark frequentierter Teilgebiete des gesamten Einzugsgebiets durch die verschiedenen Orte der Observatorien, übereinstimmend wird dabei jedoch nach wie vor die iberische Halbinsel als Herkunftsort methanarmer Luftmassen dargestellt.

Die Dominanz des Einflusses von Jahreszeiten über denjenigen der Lage der Messstandorte, wie es bei der Untersuchung des CO₂-Haushalts der Fall ist (s. Abb. 5.19), ist für die Analyse des CH₄-Haushalts nicht gültig, da Abbildung 5.26 unterschiedliche stationenspezifische Quellregionen zu gleichen Jahreszeiten je nach betrachtetem Rezeptorstandort aufzeigt.

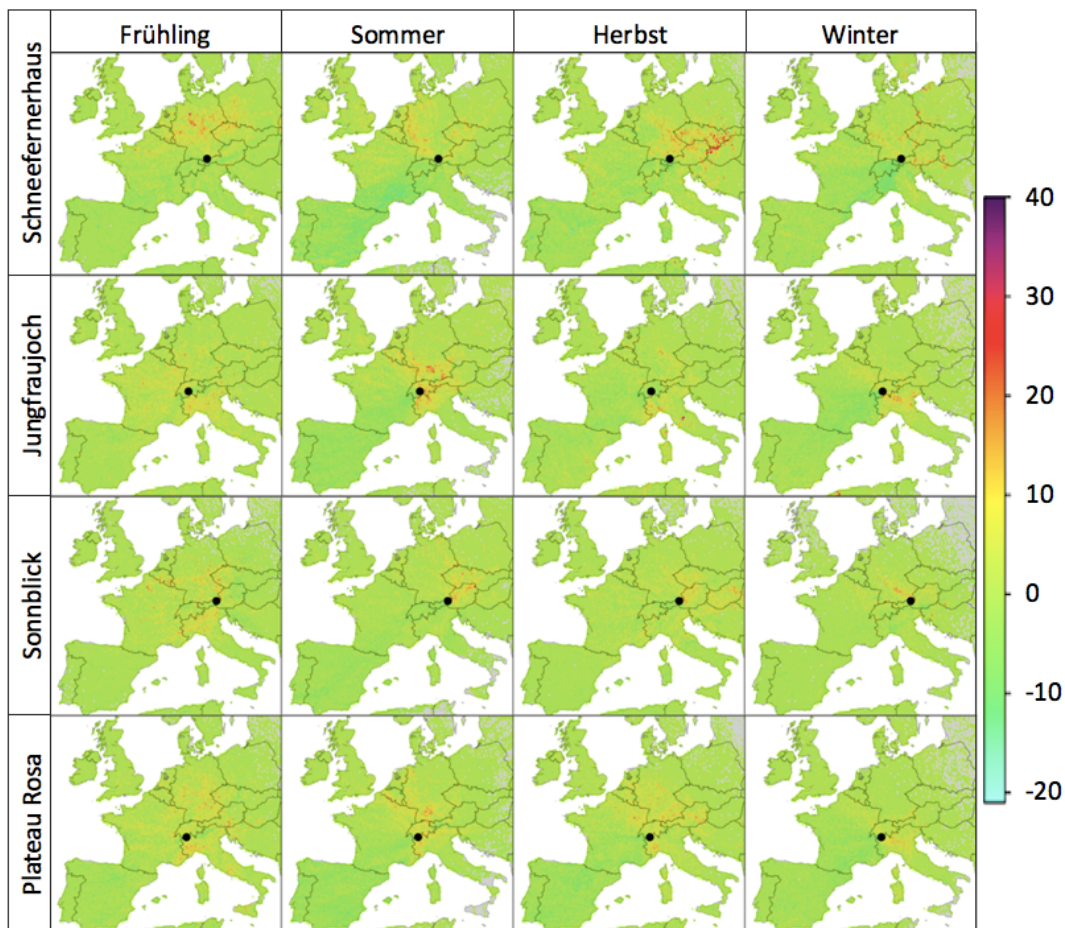


Abb. 5.26: Nach Jahreszeiten und Stationen differenzierte Beiträge aus den farbig codierten Gitterzellen zu den saison- und trendbereinigten CH₄-Konzentrationen (in ppb), die während des Untersuchungszeitraums 2011–2015 an den Stationen Jungfraujoch, Plateau Rosa, Sonnblick bzw. Schneefernerhaus gemessen wurden
Quelle: Eigene Darstellung

In der Zusammenlegung der für die einzelnen Observatorien separat berechneten, saisonalen konzentrationsgewichteten Trajektorienfelder der Abbildung 5.27 ist in Übereinstimmung mit den bisherigen Resultaten die iberische Halbinsel zu allen Jahreszeiten als großflächiges Herkunftsgebiet methanarmer Luftmassen erkennbar. Eine plausible Erklärung hierfür ist das Fehlen von Feuchtgebieten im charakteristischerweise trockenen mediterranen Raum. Feuchtgebiete sind die wichtigste natürliche Methanquelle und reagieren sehr sensibel auf Klimaänderungen und Witte-

rungsanomalien wie höhere Niederschläge und Temperaturen. So werden Methanemissionen aus Feuchtgebieten einerseits stark durch den Wasserstand beeinflusst, da höhere Wasserstände aufgrund hoher Niederschlagsmengen die anaeroben Bedingungen, die Voraussetzung für die Methanbildung sind, fördern. Andererseits können die Zersetzungsprozesse durch höhere Temperaturen begünstigt werden. Neben den Feuchtgebieten unterliegen auch die anthropogenen Quellen wie Reisfelder und die Verbrennung von Biomasse dem Einfluss dieser klimatischen Faktoren, sodass quelltypübergreifend Wärme und Feuchte große Auswirkungen auf die Intensität der CH_4 -Emissionen haben. Dieser Einfluss lässt sich in den jahreszeitlichen Karten der Abbildung 5.27 nicht nur anhand der südwesteuropäischen Trockengebiete und ihrer CH_4 -armen Luftmassen wiederfinden, sondern ist auch in Anbetracht der hohen CH_4 -Emissionen aus Regionen großer, natürlicher wie künstlicher (vor allem geflutete, ehemalige Bergbaugebiete) Feuchtgebiete wie beispielsweise in Polen zu erkennen. Der konzentrationssteigernde Einfluss höherer Temperaturen wird in den saisonalen CWT-Karten in Gestalt intensiverer CH_4 -Emissionen in Sommer und Herbst sichtbar.

In den Wintermonaten (Dezember bis Februar) verschwinden die nördlichsten Quellgebiete (Ost-Polen, Slowakei, Ungarn und Litauen), die sonst für hohe CH_4 -Konzentrationen an den hochalpinen Standorten verantwortlich sind, da Feuchtgebiete dort zu dieser Jahreszeit schneebedeckt und/oder zugefroren sind und keine Klimagase emittieren. Die im Winter sichtbaren Emissionsregionen sind weiter westlich lokalisiert und können der Holz- und Kohleverbrennung zu Heizzwecken zuzuschreiben sein, was aus den analogen CWT-Karten für CO_2 bereits bekannt ist (s. Abb. 5.27 und Abb. 5.20). Dennoch sind die CH_4 -Emissionen aus der Holzfeuerung um ein Vielfaches niedriger als die dabei gleichzeitig emittierten Mengen CO_2 (Lavorel et al. 2007). Dies ist auch der Grund, warum Waldbrände im Mittelmeerraum in den saisonalen CWT-Karten für die CH_4 -Messungen des Alpenraums keine sichtbaren Emissions-Hotspots abbilden, jedoch eine wichtige Quelle in den analogen Karten der jahreszeitlich differenzierten konzentrationsgewichteten Trajektorienfelder für CO_2 darstellen (s. Abb. 5.20).

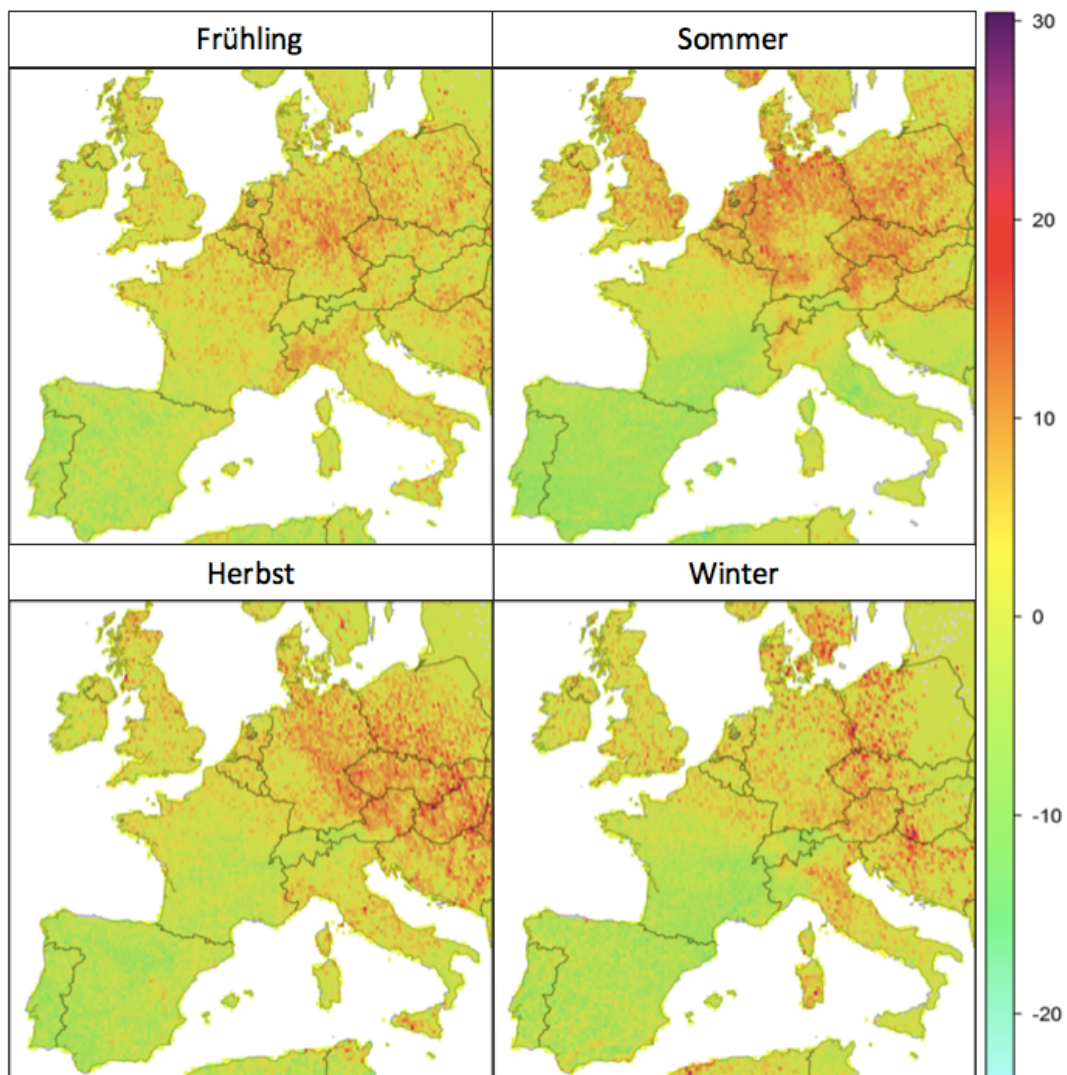


Abb. 5.27: Jahreszeitliche Beiträge aus den farbig codierten Gitterzellen zu den saison- und trendbereinigten CH₄-Konzentrationen (in ppb), die während des Untersuchungszeitraums 2011–2015 an den Stationen Jungfraujoch, Plateau Rosa, Sonnblick und Schneefernerhaus gemessen wurden

Quelle: Eigene Darstellung

5.3.3 Einzeljahres-Analysen

Die in den vorherigen Teilkapiteln bereits erörterten, grundsätzlichen Phänomene der Quell- und Senkendektion mit einem durch negative CH_4 -Beiträge bekannten Südwesten Europas und emissionsintensiven Regionen im Nord(west)en, Osten und Süden Europas stellen auch bei der jahresweisen Analyse des Einflusses auf die alpinen CH_4 -Konzentrationen ein Kontinuum dar (s. Abb. 5.28). Ebenfalls in Konsistenz mit den bisherigen Resultaten findet sich in allen fünf jährlich aggregierten CWT-Karten der Abbildung 5.28 die zentrale Alpenregion stets als Gebiet negativer Beiträge zu den CH_4 -Residuen der Alpenobservatorien wieder. Die Unterschiede zwischen den Jahren sind wie zuvor bei den jahreszeitlichen Variationen (s. Kapitel 5.3.2) durch die Ausprägungen der klimatischen Faktoren Niederschlag und Temperatur zu erklären. Jahre und Regionen mit hohen Niederschlagssummen meist in Verbindung mit warmen Sommern und milden, nassen Wintern weisen dementsprechend hohe jährliche Beiträge zu den CH_4 -Konzentrationen des Alpenraums auf. Die Größenordnung der jährlichen Unterschiede in den Beiträgen ist in etwa mit dem Schwankungsbereich der saisonalen Beiträge zu vergleichen (s. Abb. 5.27) und umfasst im Mittel über den fünfjährigen Untersuchungszeitraum Werte von -20 bis +20 ppb.

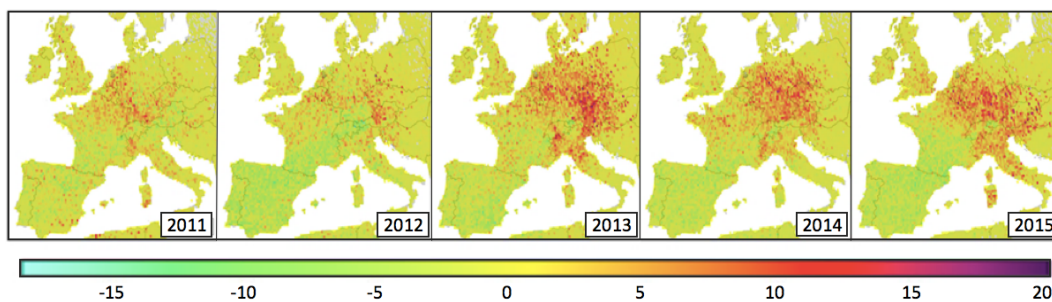


Abb. 5.28: Jährliche Beiträge aus den farbig codierten Gitterzellen zu den saison- und trendbereinigten CH_4 -Konzentrationen (in ppb), die während des Untersuchungszeitraums 2011–2015 (v.l.n.r.) an den Stationen Jungfraujoch, Plateau Rosa, Sonnblick und Schneefernerhaus gemessen wurden

Quelle: Eigene Darstellung

6 Unsicherheitsabschätzung und Plausibilitätsprüfung

Reimann et al. (2008) sprechen in vergleichbaren Studien der Kombination von Messdaten mit Trajektorienanalysen das Potential zu, auf europäische Emissionsmengen rückzuschließen und als unabhängiges Werkzeug zur Verifizierung anthropogener Spurengasemissionen, wie sie in internationalen Verträgen determiniert sind, Verwendung zu finden. Für eine Einschätzung, inwieweit auch die hier angewandte Methodik (s. Kapitel 4) und die mit ihr erzielten Ergebnisse des vorangegangenen Kapitels zuverlässig Rückschlüsse auf Emittenten und Senken verbunden mit deren zeitlicher Variabilität geben, bedarf es nicht nur der logischen Interpretation der Resultate (s. Kapitel 5), sondern in erster Linie der Quantifizierung der mit den Ergebnissen einhergehenden Unsicherheiten sowie der Prüfung ihrer Plausibilität.

Hierzu wird in den nachfolgenden Unterkapiteln einerseits die Aussagekraft und Reliabilität der kartenbasierten Projektergebnisse anhand der Frequentierung des Untersuchungsgebietes sowie des Grenzschichtkontakts der zugrunde liegenden Partikeldispersionsrechnungen beurteilt. Ergänzend bietet der Vergleich mit Ergebnissen aus der inversen Modellierung von Klimagasflüssen und -konzentrationen, wie sie beispielsweise den Projekten Copernicus Atmosphere Monitoring Service (CAMS) und Jena CarboScope entstammen, eine zusätzliche Möglichkeit zur Prüfung der Plausibilität der zuvor vorgestellten Ergebnisse.

6.1 Aussagekraft der Resultate in Abhängigkeit von Footprint und Grenzschichtkontakt

Prinzipiell gilt, dass die Zuverlässigkeit eines Gitterzellenwertes in direktem Zusammenhang mit der Frequentierung derselben Gitterzelle steht. Denn je größer die Anzahl der einzelnen Trajektorienendpunkte innerhalb einer Gitterzelle ist, desto höher ist die Sicherheit, dass der für diejenige Gitterzelle kalkulierte Wert der Realität entspricht und nicht einen Extremwert bzw. Ausnahmestatus widerspiegelt. Mit zunehmender Trajektorien-dichte steigt dementsprechend die Reliabilität des errechneten Beitrags aus den Gitterzellen des Untersuchungsgebiets zu den Klimagasmesswerten der Alpenobservatorien.

Im Zuge vier hochalpiner Standorte als Rezeptoren der FLEXPART-Partikeldispersion befinden sich die Gitterzellen stärkster Frequentierung und damit höchster Zuverlässigkeit in unmittelbarer Nähe zu den Alpenobservatorien JFJ, PRO, UFS und

SON sowie im von den vier Stationen aufgespannten Kerngebiet der alpinen Untersuchungsregion, das in etwa den Perimetern der Alpenkonvention entspricht (s. Abb. 3.1). Aufgrund der über dem Analysegebiet vorherrschenden westlichen Hauptanströmrichtung durch die Lage innerhalb der Westwindzone verläuft die weitere Ausdehnung des Footprints, der die Frequentierung der einzelnen Gitterzellen durch die Rückwärtstrajektorien wiedergibt, nicht nach allen Richtungen symmetrisch, sondern ist nach Westen hin verschoben (s. Abb. 4.4). Insgesamt liegen über fünf Prozent der Trajektorienendpunkte der Partikeldispersionsrechnungen während des fünfjährigen Untersuchungszeitraums 2011–2015 innerhalb der alpinen Kernzone des Untersuchungsgebietes inklusive des Alpenvorlandes, woraus den Resultaten der Fokusregion eine hohe Verlässlichkeit und Aussagekraft bescheinigt werden kann.

Neben der Trajektorienendichte ist die Intensität des Kontakts zur bodennahen Grenzschicht ein weiteres, wichtiges Kriterium zur Abschätzung der Zuverlässigkeit der Projektergebnisse. Denn je stärker der prozentuale Grenzschichtkontakt innerhalb einer Gitterzelle ist, desto höher ist die Wahrscheinlichkeit, dass die dem Modell zugrunde liegende Annahme der Aufnahme und des effektiven Transports der Veränderungen des atmosphärischen Spurengehalts beim Passieren einer Gitterzelle mit Quellen oder Senken umgesetzt wird. Die nachfolgende Abbildung 6.1 zeigt den durchschnittlichen prozentualen Grenzschichtkontakt, den die Rückwärtstrajektorien in den einzelnen Gitterzellen während der analysierten Jahre 2011–2015 aufweisen. In Analogie zum zuvor beurteilten Footprint der Abbildung 4.4 finden sich auch hier die höchsten Werte in der Nähe der Rezeptorobservatorien, an denen modellintrinsisch in unmittelbarer Bodennähe die Trajektorien ankommen. Über dem weiteren Alpenraum und seinem Vorland findet im Mittel ein mindestens 20 %-iger Kontakt mit der Grenzschicht während des Untersuchungszeitraums statt, der auch über dem restlichen europäischen Festland – abgesehen vom östlichen Randbereich – Mittelwerte von über zehn Prozent nicht unterschreitet. Diese vergleichsweise hohen Werte unterstreichen den Ablauf der im Modell angenommenen Austauschprozesse mit der bodennahen Grenzschicht, sodass für das Kernuntersuchungsgebiet der Alpen und das umliegende Mitteleuropa von der Reliabilität der im vorherigen Kapitel präsentierten Resultate ausgegangen werden kann.

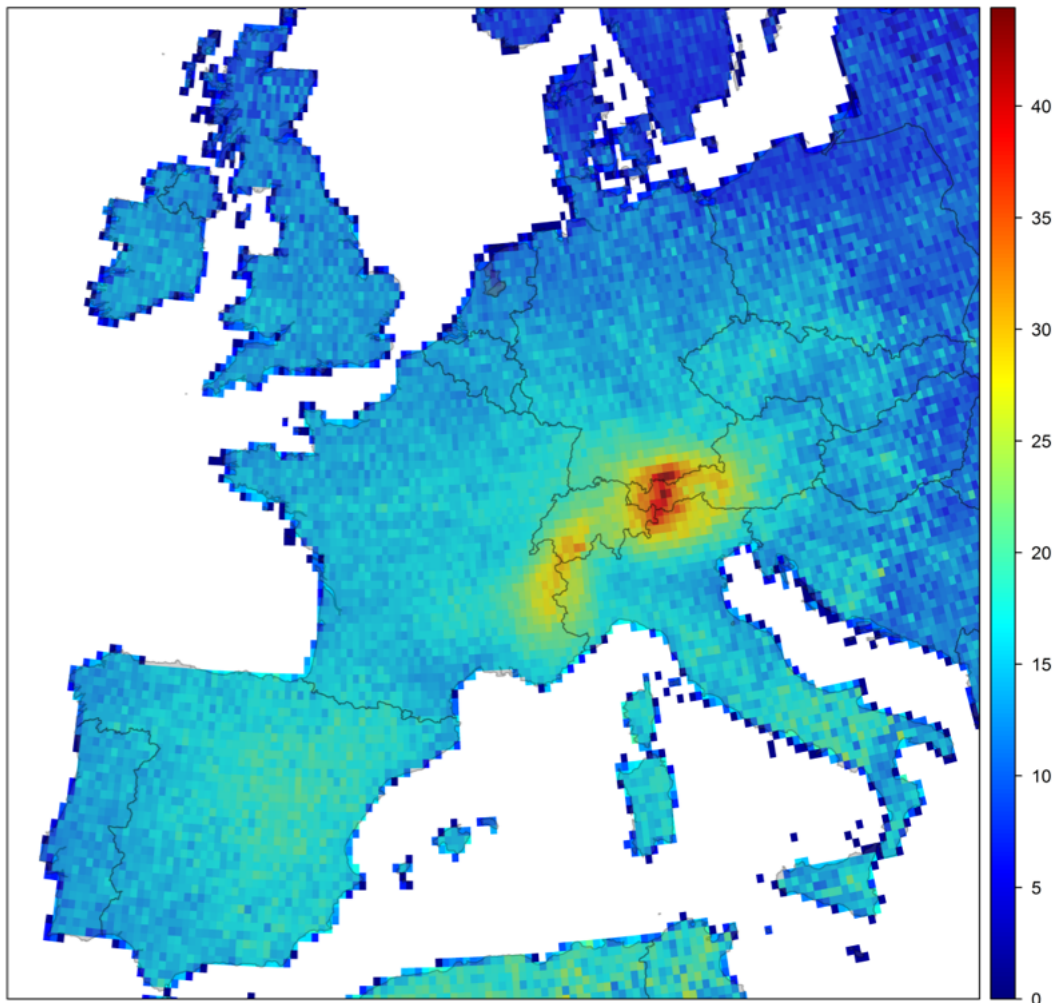


Abb. 6.1: Mittlerer prozentualer Kontakt der Zentroidpfade aus der FLEXPART-Partikeldispersionsmodellierung ausgehend von den Stationen Jungfraujoch, Plateau Rosa, Sonnblick und Schneefernerhaus mit der bodennahen Grenzschicht während des Untersuchungszeitraums der Jahre 2011–2015 (in %)

Quelle: Eigene Darstellung

6.2 Plausibilitätsprüfung anhand der Vergleiche mit Ergebnissen inverser Modellierung

Die im vorherigen Kapitel beleuchteten, modellintrinsischen Abschätzungen der Unsicherheiten und Grenzen der Reliabilität der Resultate dienen ebenso wie Vergleiche mit anderen Modellen der Beurteilung der Modellgüte. Letztere vervollständigen die Abschätzung der Zuverlässigkeit und Aussagekraft eines Modells gleichsam einer Qualitätskontrolle von außen. Da keine analogen Modelle vorliegen, die sich derselben Fragestellung widmen, greifen die folgenden Unterkapitel auf die Ergebnisse aus

inversen Modellierungen von Klimagasflüssen und -konzentrationen der bekannten Projekte Copernicus Atmosphere Monitoring Service (CAMS) und Jena CarboScope zurück. Nach einer jeweils kurzen Vorstellung der Modell-Setups werden die für die Vergleiche eigens aggregierten Fluss- bzw. Konzentrationsdaten beider Modelle den Projektergebnissen des Kapitels fünf gegenübergestellt, sodass eine Einschätzung von deren Plausibilität getroffen werden kann.

6.2.1 Invers modellierte Klimagasflüsse des Copernicus Atmosphere Monitoring Service

6.2.1.1 CO₂-Flüsse

Die CO₂-Oberflächenflüsse des Copernicus Atmosphere Monitoring Service (CAMS) werden mit Hilfe inverser Modellierung auf Basis des globalen atmosphärischen Transportmodells des Laboratoire de Météorologie Dynamique mit den ECMWF-Reanalysefeldern berechnet. Die Datenbasis setzt sich aus den folgenden Messnetzen zusammen:

- National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA)
- World Data Centre for Greenhouse Gases (WDCGG)
- Réseau Atmosphérique de Mesure des Composés à Effet de Serre database (RAMCES)
- Integrated Carbon Observation System – Atmospheric Thematic Centre (ICOS-ATC)

Die aus diesem Modell-Setup, dessen Details Chevallier (2017) beschreibt, resultierenden CO₂-Oberflächenflüsse haben eine räumliche Auflösung von 3,75° x 1,9° und werden als Dreistundenmittelwerte unterteilt in verschiedene Kategorien ausgegeben. Für den Vergleich mit den Projektresultaten aus Kapitel fünf zum Zwecke der Plausibilitätsüberprüfung werden die Dreistundenintervalle der fossilen Emissionen zusammen mit den biosphärischen (posterior) Flüssen für die analoge Untersuchungsregion Mitteleuropas mit den Alpen im Zentrum über die Jahre 2011–2015 hinweg saisonal aggregiert.

Das Ergebnis zeigt Abbildung 6.2, wobei negative CO₂-Oberflächenflüsse in Blautönen visualisiert sind und Rottöne positive CO₂-Oberflächenflüsse darstellen. Auffällig ist dabei das mit den Jahreszeiten wechselnde Vorzeichen im Betrag der Kombination biogener und fossiler CO₂-Oberflächenflüsse. Während insbesondere im Sommer negative Ausprägungen der CO₂-Oberflächenflüsse von über einem Kilogramm Kohlenstoff pro m² und Monat über weiten Teilen des Festlands vorherrschen, dominieren im Winter sowie etwas schwächer bereits im Herbst die positiven CO₂-Oberflächenflüsse über ganz Mitteleuropa mit Schwerpunkten im Osten und Nordwesten.

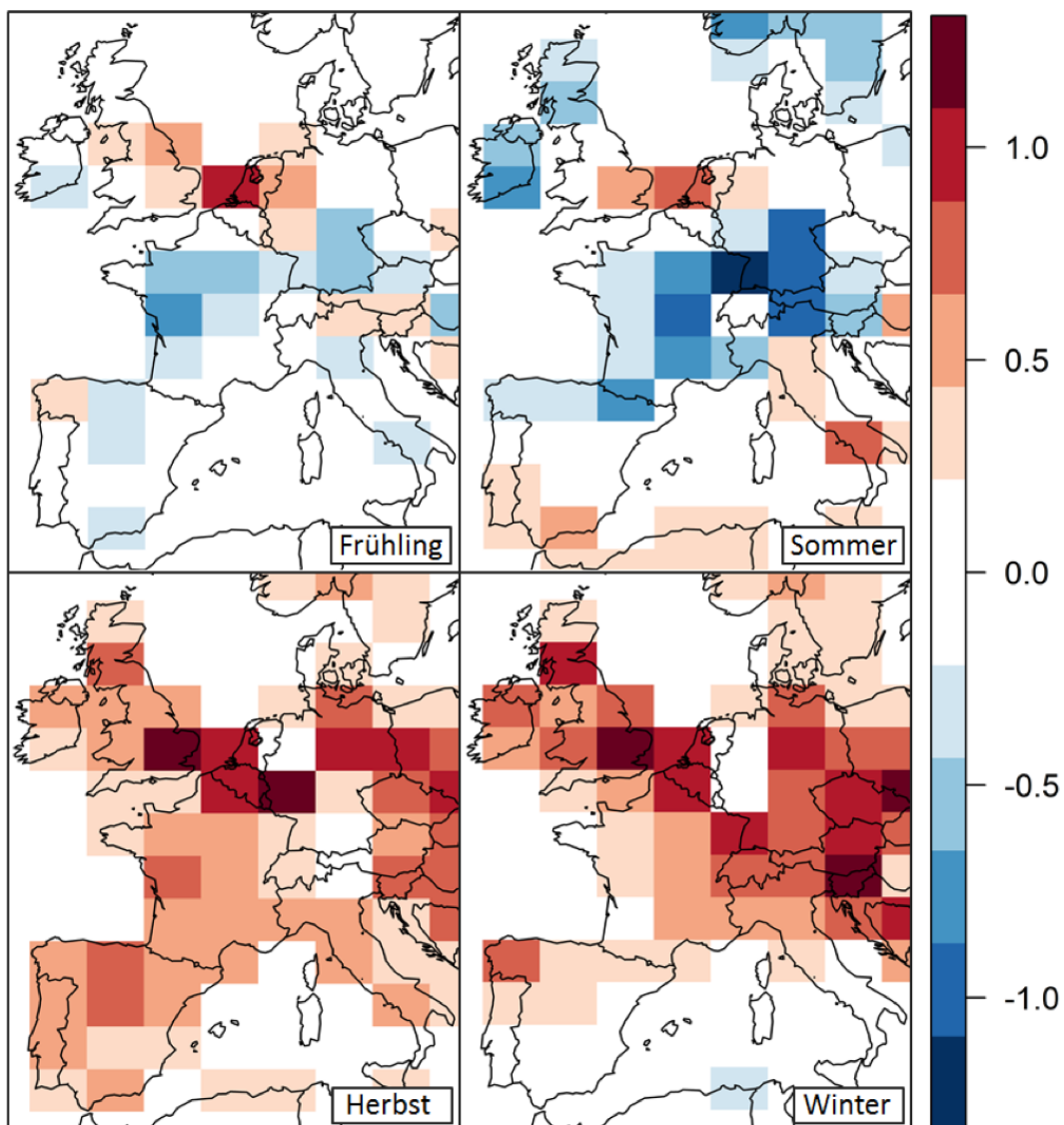


Abb. 6.2: Mittlere CAMS CO₂-Oberflächenflüsse der fossilen Emissionen sowie der Biosphäre (posterior) der Jahre 2011–2015 über Mitteleuropa saisonal aggregiert (in kg Kohlenstoff/m²/Monat)
Quelle: Eigene Darstellung

Der letztere Emissions-Hotspot wird von den komparablen Karten der Abbildung 5.20 im fünften Kapitel nicht in seiner Intensität erkannt, was der zu großen Entfernung zu den hochalpinen Rezeptorobservatorien geschuldet sein dürfte. Über diese weite Distanz in Verbindung mit dem ausdünnenden Effekt des Atlantiks im Nordwesten Mitteleuropas können Veränderungen des bodennahen Klimagasgehalts nicht mehr adäquat von Stationen in den Alpen detektiert und mittels Trajektorien rückverfolgt werden. An dieser Stelle zeigen sich die räumlichen Limitationen der CWT-Analyse auf Basis der alpinen Messreihen, die mit Ausnahme des Nordwesten Europas die saisonalen Variationen der Quell- und Senkenregionen über dem mitteleuropäischen Festland während der Jahre 2011–2015 jedoch in hoher Übereinstimmung mit den CAMS CO₂-Oberflächenflüssen wiedergibt, wie die Gegenüberstellung der Abbildungen 5.20 und 6.2 sehr anschaulich belegt. Detailliertere, wertebasierte Vergleiche sind aufgrund der stark differierenden räumlichen Auflösungen sowie der unterschiedlichen Einheiten der beiden methodischen Ansätze nicht möglich.

6.2.1.2 CH₄-Flüsse

Die Grundlage der Kalkulation der CAMS CH₄-Oberflächenflüsse bildet ein vierdimensionales, variantenreiches Datenassimilationssystem zur inversen Modellierung auf Basis des atmosphärischen Transportmodells TM5 (Bergamaschi et al. 2013, Meirink et al. 2008). Eingang in die damit erzielte Inversion finden Fernerkundungsdaten vom SCIAMACHY (Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmospheric Cartography)-Instrument des europäischen Umweltsatelliten Envisat ebenso wie hochpräzise CH₄-Messungen des NOAA-Netzwerks. Nähere Details zum Modell finden sich bei Segers & Houweling (2017).

Die CAMS-Gesamtmethanflüsse über den Untersuchungszeitraum 2011–2015 sind in Analogie zu den CWT-Karten der Abbildung 5.26 nach Jahreszeiten aggregiert in Abbildung 6.3 dargestellt. Der Vergleich der beiden Abbildungen zeigt einerseits, dass beide Modelle kaum saisonale Unterschiede für den Methaninput Mitteleuropas aufzeigen und andererseits für die iberische Halbinsel zu allen Jahreszeiten keine signifikanten CH₄-Emissionen detektieren, den nördlicheren Regionen Mitteleuropas dagegen zu allen Jahreszeiten teilweise sehr hohe positive Quellbeiträge zuschreiben. Während der Schwerpunkt hierbei in den CAMS CH₄-Oberflächenflüssen vor allem im Nordwesten zu finden ist, verortet die CWT-Methode die Methanquellen insbesondere im Norden und Osten, was wie bereits zuvor bei der Gegenüberstellung

der Pendants der CO₂-Emissionsabschätzungen (s. Kapitel 6.2.1.1) dem auf den Alpenraum und sein weiteres Umland begrenzten Einzugsgebiets der CWT-Analysen geschuldet ist. Ausschlaggebend hierfür ist die Lage der vier berücksichtigten Alpenobservatorien, deren Stationen Schneefernerhaus und Sonnblick die Gebiete östlich und nördlich des alpinen Untersuchungsentrums noch gut mit ihrem Footprint abdecken, die Luftmassen aus dem Nordwesten Europas aber nicht mehr in ausreichender Häufigkeit und Intensität erfassen.

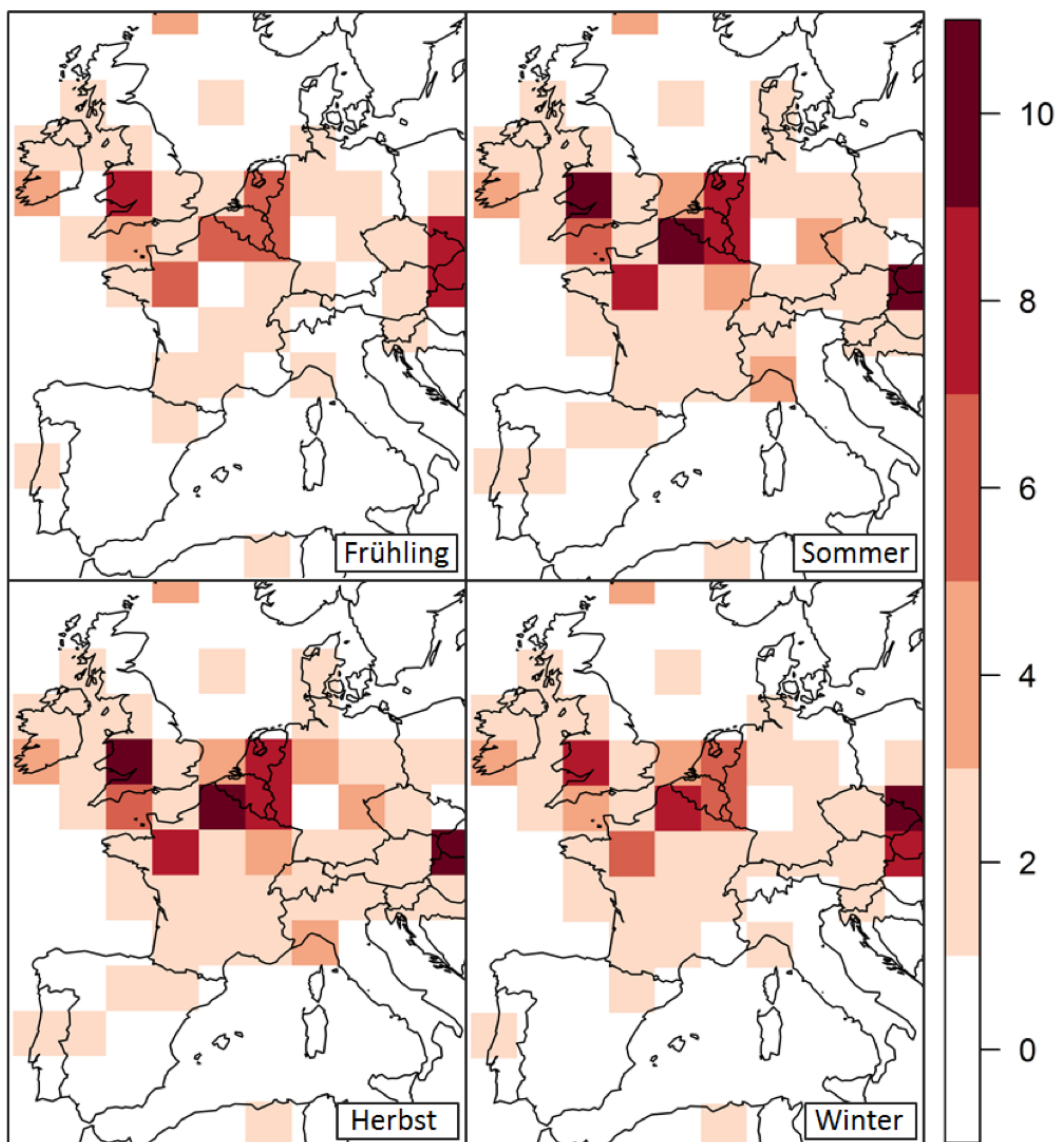


Abb. 6.3: Mittlere CAMS Gesamtmethan-Oberflächenflüsse der Jahre 2011–2015 über Mitteleuropa saisonal aggregiert (in $\mu\text{g CH}_4/\text{m}^2/\text{s}$)
Quelle: Eigene Darstellung

Zusammenfassend bestätigt der Vergleich der Methanabschätzungen die Ergebnisse der analogen Gegenüberstellung für CO₂ des vorherigen Unterkapitels sowohl hinsichtlich der Defizite der CWT-Analysen bei weit von den berücksichtigten Receptorobservatorien entfernt gelegenen Gebieten als auch die im engeren Einzugsgebiet sowie in den grundsätzlichen Strukturen sehr hohen Übereinstimmungen beider Modelle. Unter Berücksichtigung des prinzipiell andersartigen methodischen Ansatzes der messreihenbasierten CO₂-Haushaltsabschätzungen zur Detektion von Quell- und Senkenregionen mit Einfluss auf die alpinen Klimagaskonzentrationen versus demjenigen der inversen Modellierung zur Quantifizierung der globalen Klimagasflüsse bescheinigen die dennoch stark ausgeprägten Ähnlichkeiten beider Modellresultate den Projektergebnissen des Kapitels fünf eine vertrauenswürdige Plausibilität sowie der ihnen zugrunde liegenden Methodik die Funktionalität zur Charakterisierung des alpinen CO₂- und CH₄-Haushalts.

6.2.2 CO₂-Konzentrationsfelder des Jena CarboScope Projekts

Das Jena CarboScope Projekt bietet Abschätzungen der CO₂-Flüsse zwischen Erdoberfläche und Atmosphäre sowie modellierte CO₂-Konzentrationsfelder verschiedener Höhengniveaus in globaler Abdeckung. Letztere werden mit Hilfe von Vorwärtssimulationen des atmosphärischen Transportmodells TM3 auf Basis meteorologischer Reanalysefelder berechnet. Die Eingangsdaten dieser Simulationen bilden die invers modellierten CO₂-Flüsse des Projekts, die wiederum auf demselben Transportmodell in Verbindung mit Beobachtungsdaten basieren. Die Werte zwischen den berücksichtigten Messstationen werden mittels Interpolation abgeschätzt. Ausgegeben werden die resultierenden CO₂-Konzentrationsfelder in Form von NetCDF-Dateien mit einer Auflösung von 5° x 3,75° in der Einheit ppm (Rödenbeck 2005, Rödenbeck et al. 2018).

Für einen Einblick in die Daten des Jena CarboScope Projekts, dessen Fokus auf den zeitlichen Variationen der CO₂-Konzentrationen liegt, zeigt Abbildung 6.4 die globalen oberflächennahen atmosphärischen CO₂-Konzentrationsfelder der aktuellsten Version der Modellläufe (s04_v4.1) für das exemplarische erste Jahr des Analysezeitraums nach Jahreszeiten differenziert. Die saisonal gemittelten Karten der globalen CO₂-Konzentrationen für das Jahr 2011 zeigen sowohl den deutlichen Jahresgang der Biosphäre, der den atmosphärischen CO₂-Gehalt im Jahresverlauf stark prägt, als auch jahreszeitlich persistente Emissions-Hotspots insbesondere in Südostasien (s. Abb. 6.4).

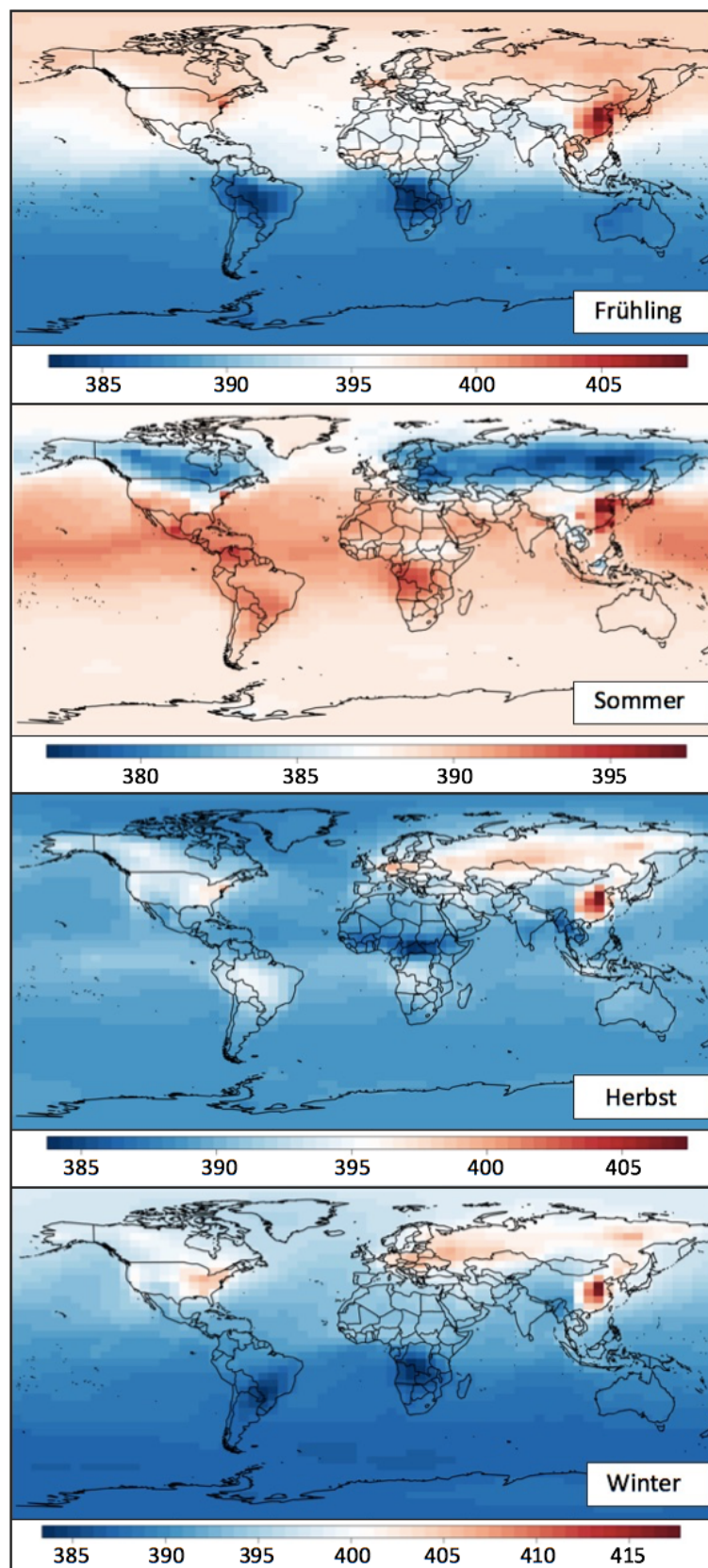


Abb. 6.4: Saisonal aggregierte globale CO₂-Konzentrationen (in ppm) des Jena CarboScope Projekts (Version s04_v4.1) auf Höhe des Normdrucks von 1013 hPa für das exemplarische Jahr 2011
Quelle: Eigene Darstellung

Für den Vergleich mit den Projektergebnissen des fünften Kapitels im Sinne einer Plausibilitätsprüfung letzterer werden die bodennahen atmosphärischen CO₂-Konzentrationsfelder des mittleren Luftdrucks der Atmosphäre auf Meereshöhe von 1013 hPa der aktuellsten Version der Jena CarboScope Modellläufe (s04_v4.1) über den analogen Untersuchungszeitraum der Jahre 2011–2015 für die Region Mitteleuropas mit den Alpen im Zentrum jährlich sowie saisonal aggregiert. Das Ergebnis der jahresweisen Zusammenstellung der oberflächennahen CO₂-Konzentrationsfelder des Jena CarboScope Projekts bilden die Karten der Abbildung 6.5 ab. Im Vergleich mit den Pendants der Abbildung 5.21 (s. Kapitel 5.2.3) sind deutliche Gemeinsamkeiten wie etwa die Verortung höchster positiver CO₂-Beiträge bzw. -Konzentrationen über alle Jahre hinweg in den nördlichen Regionen Mitteleuropas sowie deren stärkste Ausprägung während der fünfjährigen Untersuchungsperiode im Jahr des intensiven Winters 2013 erkennbar. Demgegenüber steht in beiden Abbildungen ein in den Jahresmitteln durch negative CO₂-Beiträge bzw. -Konzentrationen auffallender Südwesten Mitteleuropas. Diese beiden Regionen positiver bzw. negativer CO₂-Anomalien werden in den komparablen Abbildungen 5.21 und 6.5 nicht nur in ihrer groben Verortung, sondern darüber hinaus auch in ihrer Größenordnung in sehr guter Übereinstimmung beider Modelle wiedergegeben. So zeigen beide Projektergebnisse in diesem Vergleich Jahresamplituden von ca. fünf ppm. Diese Parallelen trotz der differierenden Modellansätze und insbesondere -auflösungen unterstreichen einmal mehr die Reliabilität der in der vorliegenden Arbeit erzielten Charakterisierung der alpinen CO₂-Konzentrationen mit Fokus auf den Einfluss umliegender Quell- und Senkenregionen sowie deren zeitlicher Variabilität.

Um nicht nur die jährlichen CO₂-Daten beider Projekte miteinander zu vergleichen, sondern die hier vorgestellten Resultate der CO₂-Haushaltsbilanzierung des Alpenraums auf Messreihenbasis auch hinsichtlich der intraannuellen Variabilität mit denen des Jena CarboScope Projekts zu vergleichen, zeigt Abbildung 6.6 die saisonalen CO₂-Konzentrationen des Jena Modells für das exemplarische erste Jahr des analysierten Zeitraums 2011–2015 für die mitteleuropäische Untersuchungsregion rund um dessen alpines Zentrum. Auch im Vergleich der jahreszeitlichen Auflösung beider Projektdaten sind grundsätzliche Gemeinsamkeiten wie beispielsweise die deutliche Identifikation der beiden Regionen positiver CO₂-Anomalien – des nordwestlichen Mittelmeerraums im Sommer sowie der östlichen Regionen Mitteleuropas in den Wintermonaten – festzustellen (s. Abb. 6.6 und Abb. 5.20 in Kapitel 5.2.2).

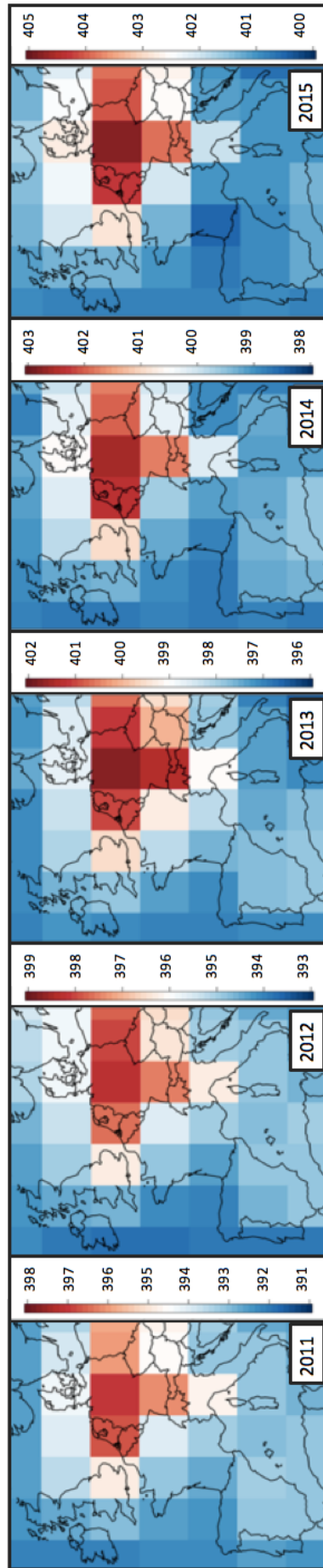


Abb. 6.5: Jahresweise aggregierte mittlere CO_2 -Konzentrationen (in ppm) des Jena CarboScope Projekts (Version s04_v4.1) auf Höhe des Normdrucks von 1013 hPa über Mitteleuropa für die Jahre 2011–2015
Quelle: Eigene Darstellung

Auf der anderen Seite werden auch die Gebiete negativer CO₂-Beiträge bzw. -Konzentrationen in ihrer jahreszeitlichen Ausprägung von beiden Modellen übereinstimmend lokalisiert, wonach vor allem im Winter, aber auch in den Übergangsjahreszeiten der Südwesten Mitteleuropas und im Sommer insbesondere die nordöstlichen Gegenden der Untersuchungsregion als solche hervortreten. Neben der kompatiblen Verortung der CO₂-Quell- und Senkenregionen im Jahresverlauf umfassen auch die Amplituden innerhalb der einzelnen Jahreszeiten denselben Wertebereich von ca. sieben ppm.

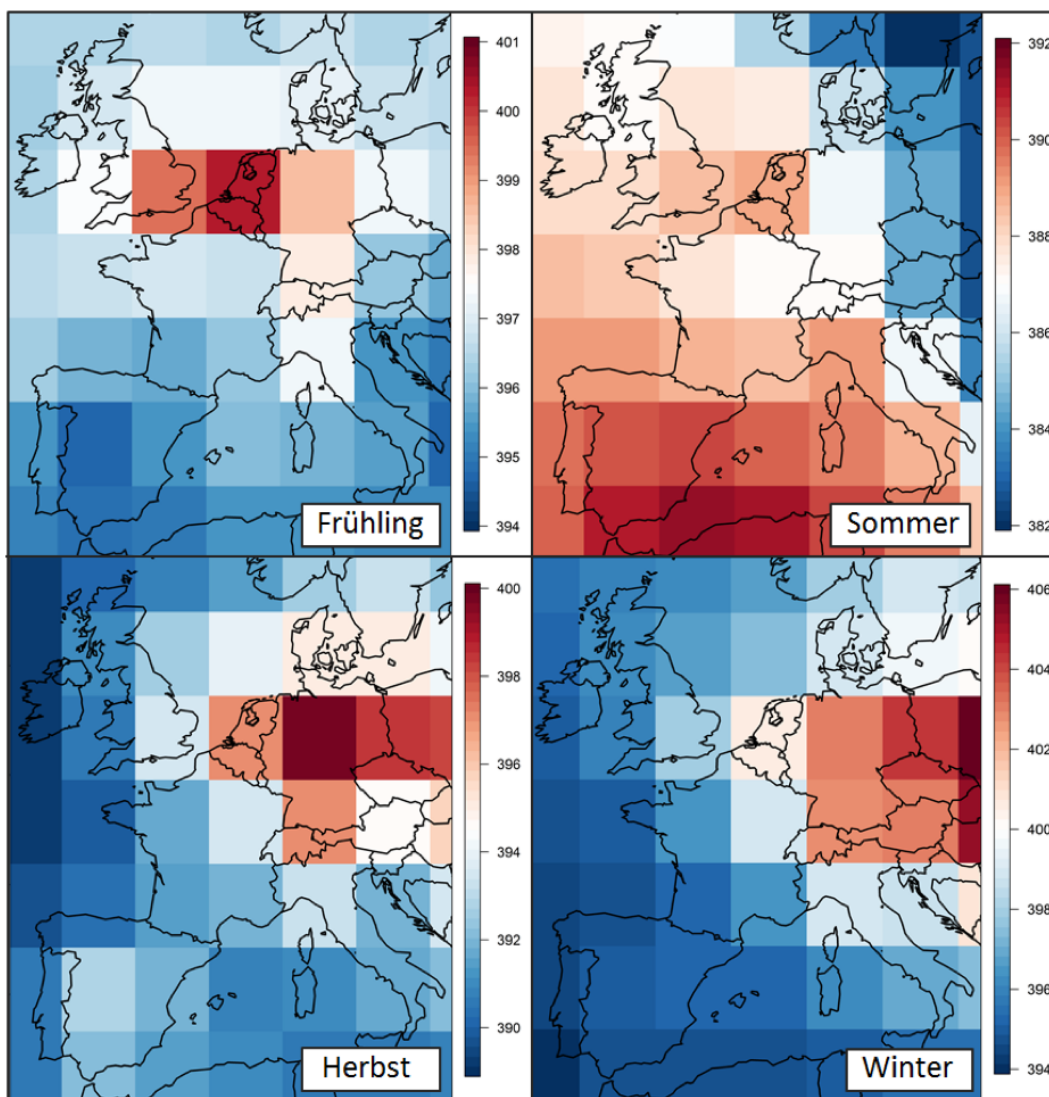


Abb. 6.6: Jahreszeitlich aggregierte mittlere CO₂-Konzentrationen (in ppm) des Jena CarboScope Projekts (Version s04_v4.1) auf Höhe des Normdrucks von 1013 hPa über Mitteleuropa für das exemplarische Jahr 2011
Quelle: Eigene Darstellung

Insgesamt heben diese Parallelen des Vergleichs der saisonal aggregierten CO₂-Daten beider Modelle deren deutlich sichtbare Homogenität in der Identifikation von Lage und Intensität der Quellen und Senken mit Einfluss auf die atmosphärische CO₂-Konzentration sowie deren jahreszeitliche Variabilität nochmals eindrücklich hervor. Diese Übereinstimmungen trotz der ausgeprägten Unterschiede in den zugrunde liegenden Methoden bescheinigen den in Kapitel fünf ausführlich vorgestellten Resultaten des in dieser Arbeit entwickelten Ansatzes ihre Plausibilität und der zugrunde liegenden Methodik ihre zuverlässige Funktionalität.

7 Synthese und Ausblick

Die Zusammenschau der vorangegangenen Kapitel bestätigt der angewandten Methodik (s. Kapitel 4) ihre Funktionalität und Zuverlässigkeit zur Charakterisierung des CO₂- sowie CH₄-Haushalts des Alpenraums auf Basis atmosphärischer Messreihen dortiger Observatorien (s. Kapitel 3). Angesichts der deutlichen Parallelen, die sich im Vergleich mit Ergebnissen aus der inversen Modellierung von Klimagasflüssen und -konzentrationen – wie sie beispielsweise den Projekten Copernicus Atmosphere Monitoring Service (CAMS) und Jena CarboScope entstammen – zeigen (s. Kapitel 6), kann der hier angewandten methodischen Vorgehensweise (s. Kapitel 4) die Fähigkeit zur zuverlässigen Detektion klimagasspezifischer Quell- und Senkenregionen mit Einfluss auf die Messungen an den alpinen Rezeptorstandorten bescheinigt werden. Die reliablen Projektergebnisse (s. Kapitel 5) heben in Verbindung mit den positiven Ergebnissen der modellinternen Unsicherheitsabschätzungen und externen Plausibilitätsprüfungen (s. Kapitel 6) die Modellgüte des Ansatzes hervor und unterstreichen vor allem die Stärke des Modells, raumzeitliche Variationen der relevanten Emittenten und Absorber unterschiedlicher Klimagase (CO₂ und CH₄) verlässlich abzubilden.

Demnach lassen sich die höchsten positiven Beiträge zu den alpinen CO₂-Konzentrationen auf osteuropäische Herkunftsregionen zurückführen, wo sich die größten europäischen Braunkohleabbaugebiete befinden. Neben den CO₂-Herkunftsanalysen konnten auch charakteristische CH₄-Quellen- und Senkenregionen identifiziert werden, wobei Südwesteuropa durch negative CH₄-Beiträge gekennzeichnet ist und emissionsintensive Regionen vom Nordwesten Europas über Osteuropa bis in den Süden des Kontinents zu finden sind. Die einzige Ausnahme von dieser nordöstlich-südwestlichen Zweiteilung bildet die Alpenregion, die sich als CH₄- ebenso wie CO₂-Senke von den umliegenden Quellregionen deutlich abhebt. Damit stellt die alpine Kernregion eine signifikante Senkenregion für beide untersuchten Klimagase (CO₂ und CH₄) inmitten eines zum Teil emissionsintensiven Europas im Untersuchungszeitraum dar und bedarf daher eines besonderen Schutzstatus aus Sicht des Klimaschutzes.

Unbedingte Voraussetzung für eine erfolgreiche Implementation des Modells zur Identifikation potentieller Emissions-Hotspots und Senkenregionen zusammen mit deren zeitlicher Variabilität ist die ausreichend intensive Abdeckung der Untersuchungsregion durch die Zentroidpfade der Partikeldispersionsrechnungen. Nur wenn die Frequentierung durch die Rückwärtstrajektorien hoch genug und der Untersuchungszeitraum bzw. die Anzahl der involvierten Stationen in der Konsequenz groß genug

für einen entsprechend stark frequentierten Footprint über dem Einzugsgebiet sind, können die CWT-Analysen aussagekräftige Karten hervorbringen. Diese Limitation beschränkt die Anwendung der Methodik auf zeitlich gering aufgelöste Fragestellungen, die sich beispielsweise wie in der vorliegenden Arbeit auf saisonale oder jahresweise Analysen beziehen. Für die Detektion verhältnismäßig standortfester Quell- und Senkenregionen und der Variabilität ihres Einflusses im Jahresverlauf eignet sich die hier vorgestellte Methodik auf Basis atmosphärischer Messreihen sehr gut, sofern der ausreichende Umfang der Datenbasis in Form der langjährigen Messreihe einer Station (s. Kapitel 5.1) oder kürzeren, nur wenige Jahre umfassenden Messreihen mehrerer Stationen (s. Kapitel 5.2 und 5.3) gewährleistet ist.

Unter Berücksichtigung dieser Anforderungen und den damit verbundenen Einschränkungen des methodischen Ansatzes erfüllt die vorgestellte Vorgehensweise die Zielsetzungen dieser Arbeit, wie die plausiblen Resultate des fünften Kapitels sowie deren Abgleich mit weitestgehend komparablen Modellen übereinstimmend belegen. Die Projektergebnisse in Form der CWT-Karten des Kapitels fünf attestieren der Methodik ihre Zweckmäßigkeit zur Beantwortung der eingangs skizzierten Fragestellungen (s. Kapitel 2), wobei sie die Vorteile wie etwa die hohe räumliche Auflösung ($0,2^\circ \times 0,2^\circ$ versus $3,75^\circ \times 1,9^\circ$ [CAMS] bzw. $5^\circ \times 3,75^\circ$ [Jena CarboScope]) oder die Klimagasspezifität eindrucksvoll visualisieren. Ein weiterer Benefit des Modells ist das Auskommen ohne a priori Emissionsdaten, wodurch die resultierenden Outputs als eine mögliche Option zur unabhängigen top-down Verifizierung von bottom-up Emissionskatastern herangezogen werden können. Um diese zumeist national erstellten Emissionsstatistiken mit der Methodik dieser Arbeit überprüfen zu können, bedarf es unter Einhaltung der oben dargelegten Voraussetzungen einer Transformation der Datenbasis auf ein Untersuchungsgebiet innerhalb nationaler Grenzen. Die hier präsentierten positiven Modellerfolge für die transnationale Untersuchungsregion des Alpenraums lassen auf eine potentiell erfolgsversprechende Übertragung des methodischen Ansatzes auch auf Gebiete innerhalb nationaler Grenzen zum Zwecke einer unabhängigen Validierung der Emissionskataster eines Landes rückschließen und eröffnen dem Modell weitere zukünftige Einsatzmöglichkeiten.

Zusammenfassung

Zielsetzung

Für die dringliche Umsetzung der Reduktionsziele, wie sie im Klimaabkommen von Paris (Vereinte Nationen 2016) festgehalten sind, ist die Identifikation beitragsstarker Emissions-Hotspots ebenso wie bedeutsamer Senkenregionen der Klimagase von großer Relevanz. Die Lokalisierung dieser Gebiete in Verbindung mit dem Wissen über ihre zeitliche Variabilität und (meteorologische) Beeinflussung bilden die Basis für effiziente Emissionsminderungsmaßnahmen einerseits sowie für die Entwicklung wirkungsvoller Schutzmechanismen für Gebiete, die als relative Klimagasabsorber fungieren auf der anderen Seite. Hier setzt die vorliegende Arbeit an, indem sie eine Methodik entwickelt und erprobt, die ausgehend von den Messzeitreihen der Klimagase CO_2 und CH_4 und ohne a priori Emissionsdaten Einblicke in den Klimagashaushalt des Einzugsgebietes ermöglicht. Durch die Verknüpfung der Klimagaskonzentrationen sorgfältig ausgewählter Messstationen hoher Repräsentativität für das Einzugsgebiet mit der zum jeweiligen Messzeitpunkt vorherrschenden synoptischen Situation, die Auskunft über die Quellherkunft der erfassten Luftbeimengen gibt, können klimagasspezifisch und mit vergleichsweise hoher räumlicher Auflösung Emittenten und Absorber lokalisiert und hinsichtlich ihrer zeitlichen Variabilität charakterisiert werden.

Untersuchungsgebiet

Messstandorte überregionaler Repräsentativität fernab lokaler Emissionsquellen, die beste Voraussetzungen für aussagekräftige Untersuchungen zur Quellherkunft der Klimagase schaffen, finden sich in Mitteleuropa insbesondere an den Observatorien im alpinen Hochgebirge. Die hochgelegenen Alpenobservatorien der deutschen Umweltforschungsstation Schneefernerhaus (UFS), des Sphinx-Observatoriums Jungfrauojoch (JFJ) in der Schweiz, des Sonnblick-Observatoriums (SON) in Österreich und des Observatoriums Plateau Rosa (PRO) in Italien erfassen den Zustand der freien Troposphäre ebenso wie den Ferntransport von Luftmassen auf höchstpräzisem, qualitätsgesichertem Niveau gemäß den Qualitätsstandards des internationalen Atmosphärenbeobachtungsprogramms Global Atmosphere Watch (GAW) der Weltmeteorologieorganisation (WMO) der Vereinten Nationen. Die vier ausgewählten Observatorien sind entlang des Alpenhauptkamms von Südwesten bis nach Nordosten lokalisiert, wodurch das Hauptuntersuchungsgebiet innerhalb der Perimeter der Alpenkonvention ebenso abgedeckt wird wie das allseitige Umland der Alpen. Die dadurch gewährleistete Abdeckung des Alpenraums als Fokusregion der Charakterisierung des

mitteleuropäischen CO₂- sowie CH₄-Haushalts einhergehend mit dem höchsten Datenqualitätsniveau bei weitreichender Repräsentativität der Messungen bietet eine ideale Datengrundlage für die Untersuchungen zur Quellherkunft der Klimagase.

CO₂-Haushaltsuntersuchungen für die Messungen am Schneefernerhaus

Zunächst werden die CO₂-Haushaltsuntersuchungen einzig für die GAW-Globalstation Zugspitze/Schneefernerhaus durchgeführt, wobei verschiedene herkunftbezogene Analyseverfahren auf die CO₂-Konzentrationen angewandt werden, um sukzessive einen immer detaillierteren Einblick in den CO₂-Haushalt der UFS zu erlangen. Erste grundlegende Hinweise auf die Zugehörigkeit von Luftmassen geben Filtermethoden, die über die Identifizierung von lokalen Kontaminationen der Messgröße hinaus eine Differenzierung in die Kategorien großräumige Hintergrundkonzentration und regionale Beeinflussung erlauben. Für die Differenzierung der gemessenen Werte entsprechend ihrer Zugehörigkeit zur großskaligen atmosphärischen Hintergrundkonzentration, zur regionalen Herkunft oder zu lokalen Quellen wird eine Vielzahl unterschiedlicher Filteransätze über einen fünfjährigen Testzeitraum (2011–2015) für die CO₂-Messungen an der GAW-Globalstation Zugspitze/Schneefernerhaus adaptiert. Das breite Spektrum unterschiedlicher Filterverfahren, das meteorologische, statistische, tracer- und trajektorienbasierte, tageszeitliche sowie kombinierte Ansätze umfasst, begründet sich darin, dass die zuverlässigste Filtermethode standortabhängig und demzufolge für jede Messstation individuell auszuwählen ist (Kaiser et al. 2007, Ruckstuhl et al. 2012).

Die Identifikation der stationsspezifisch besten Filtermethode erfolgt zusammen mit der Validierung der einzelnen Filterverfahren im Vergleich der unterschiedlich gefilterten Hintergrundkonzentrationen mit den Klimagasdaten der marinen Grenzschicht der Atmosphäre der National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA) (Dlugokencky et al. 2015). In diesem Vergleich mit den NOAA-Referenzwerten unbeeinflusster Luftmassen erzielen die Klimagas-Hintergrundkonzentrationen der radonbasierten Filterung der Luftmassen in Anlehnung an die Methodik von Griffiths et al. (2014) für die CO₂-Konzentrationen der UFS die stärkste Übereinstimmung bei gleichzeitig nicht zu restriktiver Filterung, die zu hohen Datenverlust mit sich bringen würde. Demzufolge können 43 % der Messwerte der Jahre 2011–2015 als repräsentativ für den großräumigen Hintergrund angesehen werden, während die restlichen 57 % regional beeinflusst sind. Aus den Resultaten der Filterung lassen sich außerdem die Wachstumsraten der nach ihrer (über-)regionalen Herkunft separierten CO₂-Messwerte ableiten. Gemittelt über den knapp fünfjährigen Untersuchungszeitraum weisen Messungen grenzschichtbeeinflusster Luftmassen eine 6 % stärkere

Wachstumsrate verglichen mit dem Trend der freien Troposphäre auf. Letzterer beläuft sich auf der Zugspitze 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 stimmt exakt mit vergleichbaren Studien andernorts überein (Tsutsumi et al. 2006) und belegt damit einmal mehr die Funktionalität des radonbasierten Filterverfahrens.

Um über die Differenzierung zwischen überregionalen und grenzschichtbeeinflussten Luftmassen hinaus detailliertere Einblicke in die Herkunft der gemessenen Luftbeimengen zu erlangen, können die Klimagasmesswerte mit den zu ihrem jeweiligen Messzeitpunkt vorherrschenden synoptischen Situationen verknüpft werden. Als zuverlässiges Werkzeug zur Rekonstruktion dynamischer Prozesse in der Atmosphäre auf der synoptischen Skala, denen ein symbolisches Luftpaket vor seiner Ankunft und Aufzeichnung am Messstandort unterworfen war, haben sich Rückwärtstrajektorien aus der Dispersions- und Transportmodellierung etabliert (Hopke 2016). Rückwärtstrajektorien ermöglichen eine vierdimensionale Rückverfolgung dieses Pfades, den Luftpakete kürzlich zurückgelegt haben und entlang dem sich ihre charakteristische chemische Zusammensetzung gebildet hat (Crawford et al. 2007).

Um den Zusammenhang zwischen Klimagaskonzentrationen von Luftmassen, die an einem Standort gemessen werden, und deren Herkunft in Form von Rückwärtstrajektorien zu analysieren, gibt es eine Vielzahl unterschiedlicher Methoden zur Klassifikation von Trajektorien. Diese können grob in zwei unterschiedliche methodische Herangehensweisen unterteilt werden. Die erste besteht darin, die Trajektorien mittels statistischer Verfahren zu gruppieren und daraufhin die Klimagaskonzentrationen am Rezeptorstandort für jede Trajektoriengruppe zu analysieren, um zu sehen, ob einzelne Cluster mit unterschiedlichen Konzentrationsniveaus assoziiert sind. Neben dieser multivariaten statistischen Klassifikationsmethode (Clusteranalyse, CA) untersucht ein zweiter Ansatz Luftmassen hinsichtlich des geographischen Einflusses auf ihre chemische Zusammensetzung, indem die Beziehungen zwischen atmosphärischen Messresultaten und dem Verlauf sowie der Verweilzeit der Luftmassen auf der Grundlage von Rasterkarten visualisiert werden (Fleming et al. 2012). Ein prominenter Vertreter dieses Verfahrens, das die geographische Herkunft ebenso wie die Aufenthaltszeiten der Luftmassen über potentiellen Quell- und Senkenregionen mit den Klimagasmesswerten zum jeweiligen Ankunftszeitpunkt der Luftmassen an der Messstation verbindet, ist die Methode der konzentrationsgewichteten Trajektorienfelder (concentration weighted trajectory fields, CWT). Beide trajektorienbasierten Herkunftsanalyseverfahren werden auf die CO₂-Messungen am Rezeptorstandort Schneefernerhaus/Zugspitze der Jahre 2000–2015 angewandt, um den regionalen

Kohlendioxidhaushalt und damit die Beeinflussung der Messwerte durch Emittenten und Absorber im Einzugsgebiet der UFS besser zu verstehen.

Das strukturentdeckende Verfahren der Clusteranalyse identifiziert angewandt auf die Rückwärtstrajektorien des 16-jährigen Zeitraums bedeutsame atmosphärische Transportmuster für die CO₂-Messungen an der UFS. Auf Basis der zuvor durchgeführten Filterung können damit einflussreiche Luftmassenströme separat für den regionalen Beitrag und denjenigen der nordhemisphärischen Hintergrundkonzentration ermittelt werden. Hierzu werden zwei voneinander unabhängige Clusteranalysen für die mittels des vorgeschalteten Filterverfahrens separierten Zugehörigkeiten der Luftmassen, die zum Startzeitpunkt der Rückwärtstrajektorien am Rezeptorstandort ankommen, erstellt. Sowohl für die nordhemisphärischen als auch für die mitteleuropäischen Filterergebnisse wird ein weites Spektrum von mehreren hundert Clusteranalysen der entsprechend selektierten Rückwärtstrajektorien berechnet, das sich aus den Variationen von Clusteranzahl, Länge der Trajektorien und Klassifikationsverfahren zusammensetzt. Anhand der höchsten Übereinstimmung 30 verschiedenartiger Indizes zur Auswahl der besten Clusteranzahl werden für nordhemisphärisch sowie für regional repräsentative Luftmassen die aussagekräftigsten Clusteranalyseversionen identifiziert. Beide so ausgewählten Clusteranalysevarianten werden schließlich mit den zugehörigen, um Saisonalität und langjährigen Trend bereinigten CO₂-Konzentrationen (Cleveland et al. 1990) des Rezeptorstandortes in Relation gesetzt, um Auskünfte über die Zusammensetzung der Messungen dieses prominenten Klimagases an der UFS hinsichtlich seines ferntransportierten bzw. regional emittierten Anteils zu erhalten.

Die mit Hilfe des nicht-parametrischen Kruskal-Wallis-Tests (Kruskal & Wallis 1952) bestätigten, signifikanten Unterschiede zwischen den CO₂-Konzentrationen der Cluster belegen die Funktionalität der Clusterung, (über-)regionale Transportmuster zu lokalisieren und qualitativ einzuordnen, ob sie sich konzentrationsmindernd oder -steigernd auf die Kohlendioxidmessungen an der Zugspitze auswirken (Cheng et al. 2013). So zeigen sich beispielsweise für hohe winterliche Kohlendioxidkonzentrationen an der UFS Luftmassentransporte verantwortlich, die dem zweiten regionalen Cluster zugeordnet werden können und aus Nord(ost)en anströmen. Im Sommer hingegen trägt das regionale Cluster Nummer eins maßgeblich zu hohen CO₂-Messwerten an der Umweltforschungsstation bei, bleibt jedoch in seiner Einflussstärke hinter der des zweiten Clusters zurück.

Die Methode der Trajektoriencluster lässt demnach qualitative Rückschlüsse aus der Relation von Clustern der Rückwärtstrajektorien der UFS mit den zeitgleich dort aufgezeichneten Klimagasmessungen zu, wobei relevante Transportmuster identifiziert,

nicht aber einzelne CO₂-Quellen und -Senken lokalisiert werden können (Apadula et al. 2003). Die Detektion geographischer Gebiete mit Einfluss auf die Klimagaskonzentrationen eines Standortes erfolgt über die Berechnung konzentrationsgewichteter Trajektorienfelder, deren Vorgehensweise in bisherigen Studien zur Quellzuordnung von Spurengasen an der Untersuchungsstation Schneefernerhaus als bestes statistisches Verfahren aus dem Vergleich unterschiedlicher Methoden hervorgegangen ist (Kaiser et al. 2007). Wie zuvor die Clusteranalyse verknüpft auch das CWT-Verfahren die an der Messstation ankommenden Pfade atmosphärischer Luftmassen in Form von Rückwärtstrajektorien mit den zeitgleich gemessenen Klimagaskonzentrationen. In Erweiterung zur Clusterung der Rückwärtstrajektorien berücksichtigt die CWT-Methode die Aufenthaltsdauer der Luftpakete über geographischen Regionen im Vorfeld ihrer Ankunft und Aufzeichnung am Messstandort (Begum et al. 2005).

Die Ergebnisse der CWT-Kalkulation berechnet über den 16-jährigen Untersuchungszeitraum 2000–2015 für die CO₂-Konzentrationen der GAW-Globalstation Schneefernerhaus zeigen die zentrale Alpenregion als relative Kohlendioxidsenke, wohingegen potentielle Quellgebiete ringsum mit Schwerpunkten sowohl nordöstlich der Alpen als auch südwestlich davon verortet werden. Die dominantere der beiden Quellregionen ist dabei die nordöstliche, die Teile des Nordostens Deutschlands und insbesondere weite Flächen (West-)Polens umfasst. Passierten Luftmassen diese Gebiete, verursachten sie im Mittel über die 16 Jahre eine Erhöhung der CO₂-Konzentration um durchschnittlich drei ppm am Rezeptorstandort UFS. In Anbetracht der Tatsache, dass sich die größten Braunkohlereviere Europas in dieser Region befinden, verweist dies auf den deutlich konzentrationssteigernden Einfluss der Braunkohleemissionen auf die CO₂-Messungen selbst am Luftlinie über 500 km entfernten Observatorium Schneefernerhaus auf Deutschlands höchstem Berg.

Ein Blick in die saisonal separat berechneten konzentrationsgewichteten Trajektorienfelder offenbart, dass die beiden genannten Schwerpunkte in den Quellregionen jeweils zu unterschiedlichen Jahreszeiten erhöhte CO₂-Konzentrationen an der UFS verursachen. Die sommerlichen Erhöhungen des Kohlendioxidlevels an der Zugspitze rühren demnach aus der nordwestlichen Mittelmeerregion, in der zu dieser Jahreszeit häufig hitzebedingte Feuer auftreten, deren freigesetztes Kohlendioxid eine mögliche Ursache für die im Sommer um durchschnittlich bis zu drei ppm höheren CO₂-Werte am Rezeptor der Umweltforschungsstation bei Luftmassentransport aus diesem Gebiet ist. In den Wintermonaten dagegen strömt CO₂-reiche Luft aus adverser Richtung zur Zugspitze, wonach die Holz- und Kohlefeuerung aus Nordost-Europa als Hauptverursacher erhöhter CO₂-Konzentrationen zu dieser kalten Jahreszeit ange-

sehen werden kann. Der Einfluss dieser Emittenten kündigt sich bereits im Herbst an und fällt in seinem Beitrag von durchschnittlich vier ppm stärker aus als die sommerlichen Quelleinträge aus der spanischen und südfranzösischen Mittelmeerregion, die sich im Mittel auf Werte von zwei bis drei ppm beziffern lassen. Dieses Resultat der CWT-Analyse ist in Konsistenz mit der zuvor durchgeführten CA der Rückwärtstrajektorien, wo der Einfluss der sommerlichen Hotspotregion des nordwestlichen Mediterranraumes bereits in Form des konzentrationserhöhenden Clusters eins aufgetreten ist.

Die jahresweise Erstellung der CWT-Karten visualisiert, dass es in Abhängigkeit von der Emissionsintensität, die wiederum mit durch die Meteorologie gesteuert wird, von Jahr zu Jahr zu Abweichungen dieser (saisonalen) Mittelwerte kommt. Harte und/oder lange Winter wie etwa in den Jahren 2005 und 2013 pausen sich genauso sichtbar in den konzentrationsgewichteten Quellbeitragsfunktionen durch wie heiße Sommer – z.B. der Hitzesommer 2003 –, was einmal mehr die Funktionalität der Methodik sehr anschaulich bestätigt.

Einflüsse von Quellen & Senken auf die alpinen CO₂-Konzentrationen

Aufbauend auf diesen plausiblen Ergebnissen der Charakterisierung des CO₂-Haushalts im Einzugsgebiet der UFS auf Basis der dortigen Messreihen, erfolgt in einem zweiten Schritt die Ausdehnung der Datenbasis über die Messstation auf der Zugspitze hinaus, da die Fähigkeit des Modells, Quellen und Senken zuverlässig zu identifizieren, in direktem Zusammenhang mit der Anzahl berücksichtigter Stationsdaten steht (Kaiser et al. 2007). Bei einer Ausweitung der Untersuchung auf zusätzliche Standorte der CO₂-Messung kann folglich mit einer verbesserten Modellgüte und erhöhter Reliabilität der Ergebnisse gerechnet werden (Apadula et al. 2003, Brankov et al. 1998). Daher werden die drei hochalpinen Observatorien Jungfraujoch, Sonnblick und Plateau Rosa als weitere Rezeptorstandorte in die stationsübergreifende Kalkulation der konzentrationsgewichteten Trajektorienfelder mitaufgenommen. Basierend auf dem deutlich stärker frequentierten und nach allen Himmelsrichtungen besser abgedeckten Einzugsbereichs des kumulierten Footprints der Rückwärtstrajektorien aller vier hochalpinen Observatorien kann davon ausgegangen werden, dass die Integration dieser drei zusätzlichen Rezeptorstandorte die Reliabilität der CWT-Karten und ihre Aussagekraft in Bezug auf die Quell- und Senkenregionen mit Einfluss auf die Klimagasmessungen im Alpenraum signifikant erhöht.

Das Ergebnis der kumulativen Berücksichtigung der CO₂-Konzentrationen und Partikeldispersionsimulationen aller vier hochalpinen Observatorien in Gestalt der für die Standorte gemeinsam berechneten konzentrationsgewichteten Trajektorienfelder

lokalisiert CO₂-Quellregionen ringsum die Zentralalpen. Eine Ausnahme davon bildet Frankreich im Westen der Alpen, das seit Anfang der 2000er Jahre aus der Kohleförderung ausgestiegen ist und heute die sehr viel CO₂-ärmere, jedoch stark risikobehaftete Atomenergie als Hauptenergieträger nutzt. Daneben tritt insbesondere der Raum um den Alpenhauptkamm als wichtigste großflächige CO₂-Senke Mitteleuropas auf. Stammen Luftmassen aus dieser zentralen Region inmitten des Untersuchungsgebiets, verursachten sie bei ihrer Aufzeichnung an den hochalpinen Messstandorten gemittelt über die Jahre 2011–2015 eine signifikante Reduktion des CO₂-Konzentrationsniveaus.

Emissions-Hotspotregionen finden sich dagegen im Winter vor allem nördlich und östlich der Alpen und deuten auf CO₂-Emissionen durch die Holz- und Kohlefeuerung hin, wohingegen um durchschnittlich zwei ppm erhöhte CO₂-Messwerte während des Sommers hauptsächlich bei Luftmassenadvektion aus der Mittelmeerregion südwestlich der Alpen sowie aus Zentralitalien auftreten. Der erhöhende Effekt auf die alpinen CO₂-Konzentrationen aus den Emissionen der Verfeuerung fossiler Brennstoffe, der sich im Winter auf Werte von bis zu vier ppm beläuft, ist im Herbst – wenn auch weniger stark – bereits festzustellen und rührt zu dieser Jahreszeit aus weiter landeinwärts gelegenen Regionen Osteuropas. Diese winterlich besonders dominanten Emissionsregionen umfassen Teile des Nordostens Deutschlands sowie weite Gebiete (West-)Polens und Osteuropas. Angesichts der Tatsache, dass sich die größten Braunkohleabbaugebiete Europas in genau diesen Regionen befinden, verweist dies einmal mehr auf den erheblichen Einfluss der Braunkohleemissionen auf die atmosphärischen CO₂-Konzentrationen – selbst an den hochalpinen Observatorien, die sich in über 500 km Luftlinie Entfernung auf den Gipfeln der höchsten Berge Europas befinden. Damit gelingt es den hier erstellten CWT-Karten zur Untersuchung der Beeinflussung alpiner CO₂-Messungen die Emissionen der Braunkohleförderung und -verstromung aufzuzeigen, die ansonsten vor allem mittels flugzeuggetragener Fernerkundungsmessgeräte zur Detektion von Klimagasemissionen gemessen werden (u.a. Gerilowski et al. 2011 & Krings et al. 2011).

Der im Sommer an den hochalpinen Standorten beobachtete Anstieg des CO₂-Gehalts stammt dagegen aus dem nordwestlichen Mittelmeerraum, wo in dieser Jahreszeit häufig hitzebedingte Brände ausbrechen. Das dabei freigesetzte CO₂ kann bei sommerlicher Luftmassenadvektion aus dieser Region zu einer Erhöhung der CO₂-Messwerte um durchschnittlich bis zu drei ppm an den Rezeptorstandorten führen. Im Frühjahr wiederum werden einige, vergleichsweise weniger beitragsstarke Emissionshotspots in dicht besiedelten Gebieten Westdeutschlands (Rhein-Ruhr-Gebiet), Belgiens und der Niederlande lokalisiert. Die Fahrzeug- und Kraftwerksemissionen aus

diesen Regionen treten ausschließlich in dieser Saison zu Tage, wenn die Verfeuerung fossiler Brennstoffe (Winter) und Waldbrände (Sommer) keine Rolle spielen, was darauf hindeutet, dass die beiden letztgenannten Emittenten die Hauptquellen für erhöhte CO₂-Konzentrationen an den hochalpinen Messstationen sind. Allen Jahreszeiten gemein ist die kontinuierliche Einordnung der zentralen Untersuchungsregion um den Alpenhauptkamm als Kohlendioxidsenke, wonach die alpine Kernregion den flächenmäßig größten negativen Einfluss auf die CO₂-Konzentrationen Mitteleuropas über alle Jahreszeiten hinweg aufweist.

Insgesamt zeichnen diese saisonal differenzierten Analysen des alpinen CO₂-Haushalts auf Basis der Kombination der Messreihen der Stationen UFS, JFJ, PRO und SON ein plausibles Bild der jahreszeitlich relevanten CO₂-Emittenten und -Absorber und unterstreichen dabei zugleich die Relevanz saisonaler Differenzierungen der Quellherkunftsuntersuchungen des gemessenen Kohlendioxids. Denn nur auf diesem Wege werden die stark jahreszeitlich variierenden Quell- und Senkenregionen visibel, die sich in den über den gesamten fünfjährigen Untersuchungszeitraum gemittelten Analysen zwar ebenfalls niederschlagen, nicht aber in ihrem Auftreten im Jahresverlauf unterscheid- und damit identifizierbar werden. Die insbesondere beim Kohlendioxid stark ausgeprägten saisonalen Variationen der Emittenten und Absorber zeigen sich erst in den hier vorgestellten jahreszeitlichen Differenzierungen der CWT-Analysen und ermöglichen in ihrer Gesamtheit eine schlüssige Charakterisierung der für die alpinen CO₂-Konzentrationen relevanten Regionen Europas.

Wird die CWT-Kalkulation auf Basis des über alle vier Observatorien ausgedehnten Datensatzes der Kombination aus den Residuen der Messreihen und den Rückwärts-trajektorien der FLEXPART-Partikeldispersionsrechnungen für jedes der fünf Jahre (2011–2015) separat durchgeführt, visualisiert die Methode erfolgreich die hohen CO₂-Emissionen bedingt durch den strengen Winter 2013. Dieser hatte erst nach dem gemäß meteorologischer Unterteilung bereits zu den Frühlingsmonaten zählenden März mit Minustemperaturen von bis zu -20 °C und viel Schnee ein Ende. Die durch diese Witterung bedingten, verstärkten sowie länger andauernden Emissionen aus der Holz- und Kohlefeuerung zeigen die CWT-Karten für die Schwerpunktregion Mitteleuropa zuverlässig. Ebenso gelingt es dem methodischen Ansatz auf der anderen Seite auch den darauffolgenden besonders milden Winter 2014 mit seinen witterungsbedingt sehr viel niedrigeren CO₂-Emissionen aus der reduzierten Verbrennung fossiler Energieträger wiederzugeben. Diese reliable Rekonstruktion der Jahr-zu-Jahr-Variationen in den CO₂-Emissionen anhand der jahresweisen CWT-Analysen unterstreicht anschaulich die Funktionalität der Methodik, die durch Witterung und Emissionsstärke beeinflussten, kurzfristig variierenden Anteile in den

Messdaten der hochalpinen Observatorien auf ihre Herkunftsregionen zurückzuführen. Zusammenfassend bescheinigt dies der hier angewandten Methode die Fähigkeit, sowohl saisonale als auch jahresweise Abweichungen der CO₂-Emissionen aus Gebieten mit Einfluss auf den Kohlendioxid-Haushalt der alpinen Untersuchungsregion zu identifizieren.

Einflüsse von Quellen & Senken auf die alpinen CH₄-Konzentrationen

Der nächste Schritt dieser Arbeit widmet sich der Untersuchung des CH₄-Haushalts für den Alpenraum, wobei sowohl Untersuchungsregion und -zeitraum als auch das methodische Vorgehen in Analogie zu den vorherigen CO₂-Haushaltscharakterisierungen beibehalten werden. Die einzig notwendige Modifikation umfasst die Berücksichtigung der CH₄-Messreihen anstelle der CO₂-Messreihen der Observatorien.

In der stationsübergreifenden CWT-Karte für die Analyse des alpinen CH₄-Haushalts zeichnet sich ein Bild der Zweiteilung des Einzugsgebietes in eine südwestliche CH₄-Senkenregion einerseits, die Portugal, Spanien und Südfrankreich umfasst, sowie CH₄-Emittenten vom Nordwesten (England) bis nach Süden (Italien) mit Schwerpunkten im Nordosten Mitteleuropas (Deutschland, Dänemark, Ostösterreich, Polen, Tschechien, Ungarn) andererseits ab. Die CWT-Karte der Kombination aller Stationsdaten und Rückwärtstrajektorien über den Gesamtzeitraum 2011–2015 zeigt folglich ein starkes Nordost-Südwest-Gefälle in der Beeinflussung der alpinen CH₄-Konzentrationen, wonach Erhöhungen der saison- und trendbereinigten Messwerte um 15 bis über 20 ppb bei Luftmassenadvektion besonders aus dem Nordosten Mitteleuropas auftreten, während Luftmassen aus südwestlicher Richtung einen negativen Einfluss auf die Messwerte in Form von Reduktionen um durchschnittlich 15 ppb bedingen. Eine Ausnahme dieser Nordost-Südwest-Differenzierung bildet einzig der Alpenraum, dessen Wirkung als relative CH₄-Senke trotz der umliegenden Quellregionen deutlich hervortritt. Demnach stellt die alpine Kernzone für beide untersuchten Klimagase (CO₂ und CH₄) über den Untersuchungszeitraum gemittelt eine signifikante Senkenregion inmitten des teilweise emissionsintensiven Europas dar und bedarf daher nicht zuletzt aus der Klimaschutzperspektive eines besonderen Schutzstatus.

In den saisonal berechneten konzentrationsgewichteten Trajektorienfeldern ist in Übereinstimmung mit den bisherigen Resultaten die iberische Halbinsel zu allen Jahreszeiten als großflächiges Herkunftsgebiet methanarmer Luftmassen erkennbar. Eine plausible Erklärung hierfür ist das Fehlen von Feuchtgebieten im charakteristischerweise trockenen mediterranen Raum. Feuchtgebiete sind die wichtigste natürliche Methanquelle und reagieren sehr sensibel auf Klimaänderungen und Witterungs-

anomalien wie höhere Niederschläge und Temperaturen. Der Einfluss von Wärme und Feuchte auf die Intensität der CH₄-Emissionen lässt sich in den jahreszeitlichen Karten nicht nur anhand der südwesteuropäischen Trockengebiete und ihrer CH₄-armen Luftmassen wiederfinden, sondern ist auch in Anbetracht der hohen CH₄-Emissionen aus Regionen großer, natürlicher wie künstlicher (vor allem geflutete, ehemalige Bergbaugebiete) Feuchtgebiete wie beispielsweise in Polen zu erkennen. Der konzentrationssteigernde Einfluss höherer Temperaturen wird in den saisonalen CWT-Karten in Gestalt intensiverer CH₄-Emissionen in Sommer und Herbst sichtbar. In den Wintermonaten (Dezember bis Februar) verschwinden die nördlichsten Quellgebiete (Ost-Polen, Slowakei, Ungarn und Litauen), die sonst für hohe CH₄-Konzentrationen an den hochalpinen Standorten verantwortlich sind, da Feuchtgebiete dort zu dieser Jahreszeit schneebedeckt und/oder zugefroren sind und keine Klimagase emittieren. Die im Winter sichtbaren Emissionsregionen sind weiter westlich lokalisiert und können der Holz- und Kohleverbrennung zu Heizzwecken zuzuschreiben sein, was aus den analogen CWT-Karten für CO₂ bereits bekannt ist. Jedoch sind die CH₄-Emissionen aus der Holzfeuerung um ein Vielfaches niedriger als die dabei gleichzeitig emittierten Mengen CO₂ (Lavorel et al. 2007). Dies ist auch der Grund, warum Waldbrände im Mittelmeerraum in den saisonalen CWT-Karten für die CH₄-Messungen des Alpenraums keine sichtbaren Emissions-Hotspots abbilden, jedoch eine wichtige Quelle in den analogen Karten der jahreszeitlich differenzierten konzentrationsgewichteten Trajektorienfelder für CO₂ darstellen.

Das grundsätzliche Phänomen der Quell- und Senkendetektion mit einem durch negative CH₄-Beiträge bekannten Südwesten Europas und emissionsintensiven Regionen im Nord(west)en, Osten und Süden Europas stellt auch bei der jahresweisen Analyse des Einflusses auf die alpinen CH₄-Konzentrationen ein Kontinuum dar. Ebenfalls in Konsistenz mit den bisherigen Resultaten findet sich in allen fünf jährlich aggregierten CWT-Karten die zentrale Alpenregion stets als Gebiet negativer Beiträge zu den CH₄-Residuen der Alpenobservatorien wieder. Die Unterschiede zwischen den Jahren sind wie zuvor bei den jahreszeitlichen Variationen durch die Ausprägungen der klimatischen Faktoren Niederschlag und Temperatur zu erklären. Jahre und Regionen mit hohen Niederschlagssummen meist in Verbindung mit warmen Sommern und milden, nassen Wintern weisen dementsprechend hohe jährliche Beiträge zu den CH₄-Konzentrationen des Alpenraums auf. Die Größenordnung der jährlichen Unterschiede in den Beiträgen ist in etwa mit dem Schwankungsbereich der saisonalen Beiträge zu vergleichen und umfasst im Mittel über den fünfjährigen Untersuchungszeitraum Werte von -20 bis +20 ppb.

Unsicherheitsabschätzung & Plausibilitätsprüfung

Für eine Einschätzung, inwieweit die hier angewandte Methodik und die mit ihr erzielten Ergebnisse zuverlässig Rückschlüsse auf Emittenten und Senken der Klimagase verbunden mit deren zeitlicher Variabilität geben, bedarf es nicht nur der logischen Interpretation der Resultate, sondern in erster Linie der Quantifizierung der mit den Ergebnissen einhergehenden Unsicherheiten sowie der Prüfung ihrer Plausibilität. Hierzu wird einerseits die Aussagekraft und Reliabilität der kartenbasierten Projektresultate anhand der Frequentierung des Untersuchungsgebietes sowie des Grenzschichtkontakts der zugrunde liegenden Partikeldispersionsrechnungen beurteilt. Ergänzend bietet der Vergleich mit Ergebnissen aus der inversen Modellierung von Klimagasflüssen und -konzentrationen, wie sie beispielsweise den Projekten Copernicus Atmosphere Monitoring Service (CAMS) und Jena CarboScope entstammen, eine zusätzliche Möglichkeit zur Prüfung der Plausibilität der zuvor vorgestellten Ergebnisse.

Für die Abschätzung der Unsicherheiten, mit denen die Resultate der Klimagashaushaltsuntersuchungen behaftet sind, gilt prinzipiell, dass die Zuverlässigkeit eines Gitterzellenwertes in direktem Zusammenhang mit der Frequentierung derselben Gitterzelle steht. Denn je größer die Anzahl der einzelnen Trajektorienendpunkte innerhalb einer Gitterzelle ist, desto höher ist die Sicherheit, dass der für diejenige Gitterzelle kalkulierte Wert der Realität entspricht und nicht einen Extremwert bzw. Ausnahmestatus widerspiegelt. Mit zunehmender Trajektoriendichte steigt dementsprechend die Reliabilität des errechneten Beitrags aus den Gitterzellen des Untersuchungsgebietes zu den Klimagasmesswerten der Alpenobservatorien. Insgesamt liegen über fünf Prozent der Trajektorienendpunkte der Partikeldispersionsrechnungen während des fünfjährigen Untersuchungszeitraums 2011–2015 innerhalb der alpinen Kernzone des Untersuchungsgebietes inklusive des Alpenvorlandes, woraus den Resultaten der Fokusregion eine hohe Verlässlichkeit und Aussagekraft bescheinigt werden kann.

Neben der Trajektoriendichte ist die Intensität des Kontakts zur bodennahen Grenzschicht ein weiteres, wichtiges Kriterium zur Abschätzung der Zuverlässigkeit der Modellresultate. Denn je stärker der prozentuale Grenzschichtkontakt innerhalb einer Gitterzelle ist, desto höher ist die Wahrscheinlichkeit, dass die dem Modell grundlegende Annahme der Aufnahme und des effektiven Transports der Veränderungen des atmosphärischen Spurengehalts beim Passieren einer Gitterzelle mit Quellen oder Senken umgesetzt wird. Die höchsten Werte des durchschnittlichen prozentualen Grenzschichtkontakts, den die Rückwärtstrajektorien in den einzelnen Gitterzellen während der analysierten Jahre 2011–2015 aufweisen, finden sich in der Nähe der Rezeptorobservatorien, an denen modellintrinsisch in unmittelbarer Bodennähe die

Trajektorien ankommen. Über dem weiteren Alpenraum und seinem Vorland findet im Mittel ein mindestens 20 %-iger Kontakt mit der Grenzschicht während des Untersuchungszeitraums statt, der auch über dem restlichen europäischen Festland abgesehen vom östlichen Randbereich Mittelwerte von über zehn Prozent nicht unterschreitet. Diese vergleichsweise hohen Werte unterstreichen den Ablauf der im Modell angenommenen Austauschprozesse mit der bodennahen Grenzschicht, sodass für das Kernuntersuchungsgebiet der Alpen und das umliegende Mitteleuropa von der Reliabilität der Resultate ausgegangen werden kann.

Die modellinternen Abschätzungen der Unsicherheiten und Grenzen der Reliabilität der Resultate dienen ebenso wie Vergleiche mit anderen Modellen der Beurteilung der Modellgüte. Letztere vervollständigen die Abschätzung der Zuverlässigkeit und Aussagekraft eines Modells gleichsam einer Qualitätskontrolle von außen. Da keine analogen Modelle im engeren Sinne, die sich derselben Fragestellung widmen, für eine Gegenüberstellung mit dem hier verwendeten Ansatz vorliegen, muss hierfür auf die Ergebnisse aus inversen Modellierungen von Klimagasflüssen und -konzentrationen der bekannten Projekte Copernicus Atmosphere Monitoring Service (CAMS) und Jena CarboScope zurückgegriffen werden. Für die Vergleiche werden die eigens aggregierten Fluss- bzw. Konzentrationsdaten beider Modelle den Projektergebnissen gegenübergestellt, sodass eine Einschätzung von deren Plausibilität getroffen werden kann.

Zusammenfassend zeigt der Vergleich der Modellresultate dieser Arbeit mit den invers modellierten CAMS-Klimagasflüssen vor allem im engeren Einzugsgebiet sowie in den grundsätzlichen Strukturen sehr hohen Übereinstimmungen beider Modelle. Zugleich offenbart die Gegenüberstellung Defizite der CWT-Analysen bei weit von den berücksichtigten Receptorobservatorien entfernt gelegenen Gebieten. Über (zu) weite Distanzen – wie etwa zum Nordwesten Europas, wo zudem der ausdünnende Effekt des Atlantiks hinzukommt – können Veränderungen des bodennahen Klimagasgehalts nicht mehr adäquat von Stationen in den Alpen detektiert und mittels Trajektorien rückverfolgt werden. An dieser Stelle zeigen sich die räumlichen Limitationen der CWT-Analyse auf Basis der alpinen Messreihen, die mit Ausnahme des Nordwesten Europas die saisonalen Variationen der Quell- und Senkenregionen über dem mitteleuropäischen Festland während der Jahre 2011–2015 jedoch in hoher Übereinstimmung mit den CAMS CO₂- und CH₄-Oberflächenflüssen wiedergibt. Unter Berücksichtigung des prinzipiell andersartigen methodischen Ansatzes der messreihenbasierten Klimagashaushaltsabschätzungen zur Detektion von Quell- und Senkenregionen mit Einfluss auf die alpinen Klimagaskonzentrationen versus demjenigen der inversen Modellierung zur Quantifizierung der globalen Klimagasflüsse bescheini-

gen die dennoch stark ausgeprägten Ähnlichkeiten beider Modellresultate den Ergebnissen des in dieser Arbeit adaptierten Modells eine vertrauenswürdige Plausibilität sowie der ihnen zugrunde liegenden Methodik die Funktionalität zur Charakterisierung des alpinen CO₂- und CH₄-Haushalts.

Auch im Vergleich mit den CO₂-Konzentrationsfeldern des Jena CarboScope Projekts sind deutliche Gemeinsamkeiten wie etwa die Verortung höchster positiver CO₂-Beiträge bzw. -Konzentrationen über alle Jahre hinweg in den nördlichen Regionen Mitteleuropas sowie deren stärkste Ausprägung während der fünfjährigen Untersuchungsperiode im Jahr des intensiven Winters 2013 erkennbar. Demgegenüber erscheint in beiden Modellsimulationen ein in den Jahresmitteln durch negative CO₂-Beiträge bzw. -Konzentrationen auffallender Südwesten Mitteleuropas. Diese beiden Regionen positiver bzw. negativer CO₂-Anomalien werden nicht nur in ihrer groben Verortung, sondern darüber hinaus auch in ihrer Größenordnung in sehr guter Übereinstimmung beider Modelle wiedergegeben. So zeigen beide Projektergebnisse in diesem Vergleich Jahresamplituden von ca. fünf ppm. Diese Parallelen trotz der differierenden Modellansätze und insbesondere -auflösungen unterstreichen einmal mehr die Reliabilität der in der vorliegenden Arbeit erzielten Charakterisierung der alpinen CO₂-Konzentrationen mit Fokus auf den Einfluss umliegender Quell- und Senkenregionen sowie deren zeitlicher Variabilität.

Ergänzend zur Bescheinigung der Funktionalität der angewandten Methodik heben die Vergleiche mit invers modellierten Klimagasflüssen und -konzentrationen die ausreichend intensive Abdeckung der Untersuchungsregion durch die Zentroidpfade der Partikeldispersionsrechnungen als unbedingte Voraussetzung für eine erfolgreiche Implementation des Modells zur Identifikation potentieller Emissions-Hotspots und Senkenregionen hervor. Nur wenn die Frequentierung durch die Rückwärtstrajektorien hoch genug und der Untersuchungszeitraum bzw. die Anzahl der involvierten Stationen in der Konsequenz groß genug für einen entsprechend stark frequentierten Footprint über dem Einzugsgebiet sind, können die CWT-Analysen aussagekräftige Karten hervorbringen. Diese Limitation beschränkt die Anwendung der Methodik auf zeitlich gering aufgelöste Fragestellungen, die sich beispielsweise wie in der vorliegenden Arbeit auf saisonale oder jahresweise Analysen beziehen. Für die Detektion verhältnismäßig standortfester Quell- und Senkenregionen und der Variabilität ihres Einflusses im Jahresverlauf eignet sich die hier vorgestellte Methodik auf Basis atmosphärischer Messreihen sehr gut, sofern der ausreichende Umfang der Datenbasis in Form der langjährigen Messreihe einer Station oder kürzeren, nur wenige Jahre umfassenden Messreihen mehrerer Stationen gewährleistet ist.

Unter Berücksichtigung dieser Anforderungen und den damit verbundenen Einschrän-

kungen des methodischen Ansatzes erfüllt die vorgestellte Vorgehensweise die Zielsetzungen dieser Arbeit, wie die plausiblen Resultate sowie deren Abgleich mit weitestgehend komparablen Modellen übereinstimmend belegen. Die Projektergebnisse in Form der CWT-Karten attestieren der Methodik ihre Zweckmäßigkeit für die Haushaltsuntersuchung der im Alpenraum gemessenen Klimagase CO_2 und CH_4 , wobei sie die Vorteile wie etwa die hohe räumliche Auflösung oder die Klimagasspezifität eindrucksvoll visualisieren. Ein weiterer Benefit des Modells ist das Auskommen ohne a priori Emissionsdaten, wodurch die resultierenden Outputs als eine mögliche Option zur unabhängigen top-down Verifizierung von bottom-up Emissionskatastern herangezogen werden können. Um diese zumeist national erstellten Emissionsstatistiken mit der Methodik dieser Arbeit überprüfen zu können, bedarf es unter Einhaltung der oben dargelegten Voraussetzungen einer Transformation der Datenbasis auf ein Untersuchungsgebiet innerhalb nationaler Grenzen. Die hier präsentierten positiven Modellerfolge für die transnationale Untersuchungsregion des Alpenraums lassen auf eine potentiell erfolgsversprechende Übertragung des methodischen Ansatzes auch auf Gebiete innerhalb nationaler Grenzen zum Zwecke einer unabhängigen Validierung der Emissionskataster eines Landes rückschließen. Diese zukünftige Einsatzmöglichkeit des Modells kann zur Überprüfung der Wirkung nationaler Emissionsminderungsmaßnahmen herangezogen werden und somit einen Beitrag leisten, um die zur Einhaltung der Ziele des Pariser Klimaabkommens (Vereinte Nationen 2016) dringend notwendigen Reduktionen der Treibhausgasemissionen einzelner Länder zu verifizieren.

Summary

Objective

For the urgent implementation of the reduction targets, as defined in the Paris Climate Agreement (United Nations 2016), the identification of highly contributing emission hotspots as well as significant sinks of greenhouse gases is of great relevance. The localisation of these areas, together with the knowledge of their temporal variability and (meteorological) influence, forms the basis for impactful emission reduction measures on the one hand and the development of effective protection mechanisms for areas that act as relative climate gas absorbers on the other. This is where the present study sets in by developing and testing a methodology that enables insights into the greenhouse gas budget of a catchment area based on the measurement time series of the climate gases CO₂ and CH₄ without a priori emission data. By linking the climate gas concentrations of carefully selected measurement stations of high representativeness for the catchment area with the synoptic situation prevailing at the respective measurement time, which provides information on the source origin of the recorded air samples, emitters and absorbers can be located and characterised in terms of their temporal variability in a climate specific way and with comparatively high spatial resolution.

Study area

Measurement sites of supraregional representativeness far away from local emission sources, which create the best conditions for meaningful investigations on the source origins of the climate gases, can be found in Central Europe, especially at the observatories in the high-alpine mountains. The high-altitude Alpine observatories of the German environmental research station Schneefernerhaus (UFS), the Sphinx observatory Jungfrauoch (JFJ) in Switzerland, the Sonnblick observatory (SON) in Austria and the Plateau Rosa observatory (PRO) in Italy record the state of the free troposphere as well as the long-distance transport of air masses at high precision and on a quality-assured level in accordance with the quality standards of the Global Atmosphere Watch (GAW) international atmospheric observation programme of the United Nations World Meteorological Organisation (WMO). The four selected observatories are located along the main ridge of the Alps from the southwest to the northeast, thus covering the main investigation area within the perimeters of the Alpine Convention as well as the surroundings of the Alps. The thereby ensured coverage of the Alpine region as the focus area for the characterisation of the Central European CO₂ and CH₄ budgets, together with the highest data quality level and

wide-ranging representativeness of the measurements, provides an ideal data basis for the investigations on the source origins of the greenhouse gases.

Budgetary studies for the CO₂ measurements at Schneefernerhaus

Initially, the CO₂ budgetary investigations will only be conducted for the GAW global station Zugspitze/Schneefernerhaus by implementing various origin-related analysis methods on the CO₂ concentrations in order to gradually gain a more detailed insight into the CO₂ budget of the UFS. The first basic indications of the affiliation of air masses are provided by filter methods that, in addition to identifying local contamination of the measurand, allow the differentiation into the categories of large-scale background concentration and regional influence. For the differentiation of the measured values according to their belonging to the large-scale atmospheric background concentration, to the regional origin or to local sources, a large number of different filter approaches are adapted over a five-year test period (2011–2015) for the CO₂ measurements at the GAW global station Zugspitze/Schneefernerhaus. The broad spectrum of different filtering methods, which includes meteorological, statistical, tracer- and trajectory-based, time-of-day and combined approaches, is explained by the fact that the most reliable filter method depends on the location of the site and therefore must be selected individually for each measuring station (Kaiser et al. 2007, Ruckstuhl et al. 2012).

The identification of the station-specific best filter method is carried out together with the validation of the individual filter approaches in comparison of the differently filtered background concentrations with the climate gas data of the marine boundary layer of the atmosphere of the National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA) (Dlugokencky et al. 2015). In this comparison with the NOAA reference values of unaffected air masses, the climate gas background concentrations of the radon-based filtering of air masses based on the method of Griffiths et al. (2014) for the CO₂-concentrations of the UFS achieve the strongest match with at the same time not too restrictive filtering, which would lead to high data loss. As a result, 43 % of the measurements over the years 2011–2015 can be considered representative of the large-scale background, while the remaining 57 % are regionally influenced. The results of the filtering can also be used to derive the growth rates of the CO₂ measured values separated according to their (supra-)regional origin. Measured over the almost five-year investigation period, measurements of air masses affected by the boundary layer show a 6 % higher growth rate compared to the trend of the free troposphere. The latter amounts to 1.86 ppm/year at Germany's highest measuring station (UFS) in the period 2011–2015, whereas the carbon dioxide concentration

of regional origin has increased by an average of 1.98 ppm per year. This result is exactly the same as comparable studies elsewhere (Tsutsumi et al. 2006) and proves once again the functionality of the radon-based filtering method.

In order to gain more detailed insights into the origin of the measured air masses beyond the differentiation between supra-regional- and boundary-layer-influenced air masses, the climate gas measurements can be linked to the synoptic situations prevailing at their respective measurement time. As a reliable tool for reconstructing the dynamic processes in the atmosphere on the synoptic scale to which a symbolic air parcel was subjected before its arrival and recording at the measuring site, backward trajectories from dispersion and transport modelling have established themselves (Hopke 2016). Backward trajectories allow four-dimensional tracing of this path that air parcels have recently travelled and along which their characteristic chemical composition has been formed (Crawford et al. 2007).

In order to analyse the relationship between the greenhouse gas concentrations of air masses measured at a location and their origin in the form of backward trajectories, there are a variety of different methods for classifying trajectories. These can be roughly divided into two different methodological approaches. The first is to group the trajectories by means of statistical methods and then to analyse the greenhouse gas concentrations at the receptor site for each trajectory group in order to see if individual trajectory clusters are associated with different levels of concentration. In addition to this multivariate statistical classification method (cluster analysis, CA), a second approach investigates air masses with regard to the geographic influence on their chemical composition by visualising the relationships between atmospheric measurement results and the route and residence time of air masses on the basis of raster maps (Fleming et al. 2012). A prominent representative of this method, which combines the geographical origin as well as the residence times of the air masses over potential source and sink regions with the climate gas measurements at the respective arrival time of the air masses at the site, is the method of concentration-weighted trajectory fields (CWT). Both trajectory-based analysis methods are applied to the CO₂ measurements at the receptor site Schneefernerhaus/Zugspitze from 2000 to 2015 in order to better understand the regional carbon dioxide budget and thus the influence on measured concentrations by emitters and absorbers in the UFS catchment area. The structure-discovering method of cluster analysis applied to the backward trajectories of the 16-year period identifies significant atmospheric transport patterns for the CO₂ measurements at the UFS. Based on the previously performed filtering, influential air mass flows can be determined separately for the regional contribution and those of the northern hemispheric background concentration. For this purpose,

two independent cluster analyses for the air masses that arrive at the receptor site as the starting point of the backward trajectories, separated by the upstream filter method, are created. For both (the northern hemispheric and central European) filter results, a wide spectrum of several hundred cluster analyses of the correspondingly selected backward trajectories is calculated, which consists of the variations of cluster number, length of trajectories and classification methods. On the basis of the highest correspondence of 30 different indices for the selection of the best number of clusters, the most meaningful cluster analysis versions are identified for northern hemispheric and regionally representative air masses. Both cluster analysis variants selected in this way are finally combined with the corresponding CO₂ concentrations adjusted for seasonality and long-term trend (Cleveland et al. 1990) in order to obtain information on the composition of the measurements of this prominent climate gas at the UFS with regard to its portion transported by long-distance or emitted regionally.

Significant differences between the CO₂ concentrations of the clusters, confirmed by the non-parametric Kruskal-Wallis test (Kruskal & Wallis 1952), demonstrate the functionality of the clustering to locate (supra-)regional transport patterns and to classify them qualitatively, whether they are concentration reducing or increasing (Cheng et al. 2013). For example, air mass transport, which can be assigned to the second regional cluster and flow from north(east), is responsible for high wintery carbon dioxide concentrations at the UFS. In summer, on the other hand, the regional cluster number one plays a significant role in causing high CO₂ measurements at the environmental research station, but it is less influential than the second cluster. The method of the trajectory clusters therefore allows qualitative conclusions from the relation of clusters of the UFS backward trajectories with the climate gas measurements recorded at the same time there, whereby relevant transport patterns can be identified but individual CO₂ sources and sinks cannot be located (Apadula et al. 2003). The detection of geographical areas affecting the climate gas concentrations of a site is carried out by calculating concentration-weighted trajectory fields, whose approach has emerged as the best statistical method from the comparison of different methods in previous studies on the source allocation of trace gases at the UFS (Kaiser et al. 2007). As in the previous cluster analysis, the CWT method also links the paths of atmospheric air masses arriving at the measuring station in the form of backward trajectories with the simultaneously measured greenhouse gas concentrations. In addition to the clustering of backward trajectories, the CWT method takes into account the residence time of air packages over geographical regions prior to their arrival and recording at the measuring site (Begum et al. 2005).

The results of the CWT calculation computed over the 16-year investigation period 2000–2015 for the CO₂-concentrations of the GAW global station Schneefernerhaus show the central Alpine region as a relative carbon dioxide sink, whereas potential source areas are located around it with focal regions both northeast of the Alps and southwest of it. The more dominant of the two source regions is the northeast, which includes parts of the northeast of Germany and, in particular, large areas of (western) Poland. When air masses passed through these areas, they caused an average increase in CO₂ concentration of three ppm at the UFS receptor site over the 16 years. Given the fact that Europe's largest lignite areas are located in this region, this points to the significantly concentration increasing impact of lignite emissions to the atmospheric CO₂ measurements even on the Schneefernerhaus observatory on Germany's highest mountain over 500 km away.

A look at the seasonally separately calculated concentration-weighted trajectory fields reveals that the two aforementioned priorities in the source regions cause increased CO₂ concentrations at the UFS during different seasons. Thus, the summerly increases in carbon dioxide levels at Zugspitze originate from the north-western Mediterranean region, where heat-induced fires often ignite at this time of the year, where the carbon dioxide released is a possible cause of the increasing summerly CO₂ values at the receptor site UFS by up to three ppm on average in the case of air mass transport from that area. In the winter months, however, CO₂-rich air flows from the opposite direction to Zugspitze, whereupon wood and coal combustion from northeastern Europe can be considered to be the main cause of increased CO₂ concentrations during the cold season. The influence of these issuers is already being announced in the autumn season and its contribution of four ppm on average is stronger than the summerly source entries from the Spanish and southern French Mediterranean regions, which amount to an average of two to three ppm.

The yearly compilation of the CWT maps visualises that, depending on the emission intensity, which in turn is controlled by meteorology, deviations of these (seasonal) mean values occur from year to year. Hard and/or long winters, such as in 2005 and 2013, are just as visible in the concentration-weighted source contribution functions as hot summers – for example, the hot summer of 2003 – which once again clearly confirms the functionality of the methodology.

Influences of sources and sinks on Alpine CO₂ concentrations

Based on these plausible results of the characterisation of the CO₂ budget in the catchment area of the UFS on the basis of the measurement time series there, the second step is to extend the data base beyond the measuring station at Zugspitze,

since the ability of the model to reliably identify sources and sinks is directly related to the number of stations data considered (Kaiser et al. 2007). Extending the study to additional locations of the CO₂ measurements can therefore be expected to improve the quality of the model and increase the reliability of the results (Apadula et al. 2003, Brankov et al. 1998). Thus, the three high-alpine observatories Jungfraujoch, Sonnblick and Plateau Rosa are included as additional receptor sites in the cross-station calculation of the concentration-weighted trajectory fields. Based on the much more frequented and in all directions better covered catchment area of the cumulative footprint of the backward trajectories of all four high-alpine observatories, it can be assumed that the integration of these three additional receptor locations significantly increases the reliability of the CWT maps and their significance regarding the source and sink regions with an influence on climate gas measurements in the Alpine region.

The result of the cumulative consideration of the CO₂ concentrations and particle dispersion simulations of all four high-alpine observatories in the form of the concentration-weighted trajectory fields calculated jointly for all sites locates CO₂ source regions around the Central Alps – with the exception of France in the West, which since the early 2000s has dropped out of coal production and today uses nuclear energy with low CO₂ emission but a high risk. Besides, the area around the main ridge of the Alps is the most important large-scale CO₂ sink in Central Europe. Air masses originating from this central region in the middle of the study area caused a significant reduction in the CO₂ concentration level when recorded at the high-alpine measuring sites, averaged over the years 2011–2015.

Emission hotspot regions, on the other hand, are mainly found north and east of the Alps in winter months, indicating CO₂ emissions from wood and coal firing, whereas CO₂ measured concentrations increased by an average of two ppm in the summer season mainly occur during air mass advection from the Mediterranean region southwest of the Alps as well as from central Italy. The increasing effect on Alpine CO₂ concentrations from fossil fuel combustion emissions, which in winter amounts to values of up to four ppm, can already be seen in autumn – albeit to a reduced extent – and at this time of the year comes from regions further inland in eastern Europe. These particularly dominant wintery emission regions include parts of the northeast of Germany as well as large areas of (western) Poland and eastern Europe. Given the fact that Europe's largest lignite mining areas are located in these regions, this once again points to the significant impact of lignite emissions on atmospheric CO₂ concentrations – even at the high-alpine observatories, which are located more than 500 km away at the peaks of Europe's highest mountains. Thus, the CWT maps

compiled here to investigate the influence on the Alpine CO₂ measurements succeed in showing the emissions from lignite mining and conversion into electricity, which are otherwise measured primarily using airborne remote sensing devices for the detection of greenhouse gas emissions (e. g. Gerilowski et al. 2011 & Krings et al. 2011). In contrast, the increase in CO₂ observed at the high-alpine sites in summer originates from the north-western Mediterranean, where heat-induced fires often erupt during this season. The CO₂ released during summerly air mass advection from this region can lead to an increase in measured CO₂ concentrations by an average of up to three ppm at the receptor sites. In spring, some relatively less contributing emission hotspots are located in densely populated areas of West Germany (Rhine-Ruhr area), Belgium and the Netherlands. Vehicle and power plant emissions from these regions only become apparent during this season when the combustion of fossil fuels (winter) and forest fires (summer) is irrelevant, indicating that the latter two emitters are the main sources of increased CO₂ concentration levels at the high-alpine measuring stations. Common to all seasons is the constant classification of the central study region around the main Alpine ridge as a relative carbon dioxide sink, according to which the Alpine core region has the greatest negative influence on the CO₂ concentrations in Central Europe over all seasons.

All in all, these seasonally differentiated analyses of the Alpine CO₂ budget, based on the combination of the measurement time series of the stations UFS, JFJ, PRO and SON, provide a plausible picture of the seasonally relevant CO₂ emitters and absorbers, while at the same time emphasising the relevance of seasonal differentiations of these investigations of the measured carbon dioxide concentrations. This is the only way to make visible the strongly seasonal varying source and sink regions, which are also reflected in the analyses averaged over the entire five-year investigation period, but which cannot be distinguished and thus identified in their occurrence during the course of the year. The seasonal variations of the emitters and absorbers, particularly in the case of carbon dioxide, are only apparent in the seasonal differentiations of the CWT analyses presented here and, in their entirety, enable a conclusive characterisation of the European regions that are relevant for the Alpine CO₂ concentrations. If the CWT calculation is carried out separately for each of the five years (2011–2015) on the basis of the extended dataset of the combination of the residuals derived from the measurement time series and the backward trajectories of the FLEXPART particle dispersion calculations, the method successfully visualises the high CO₂ emissions due to the strong winter of 2013 with negative temperatures of up to -20°C and a lot of snow that lasted till the end of March, which due to the meteorological subdivision is already part of the spring months. The increased and longer-lasting emissions from

wood and coal firing caused by these cold weather conditions are reliably reflected in the CWT maps for the Central European focus region. On the other hand, the methodological approach also succeeds in reflecting the following particularly mild winter of 2014 with its much lower CO₂ emissions from the reduced combustion of fossil fuels due to the moderate weather conditions. This reliable reconstruction of the year-to-year variations in CO₂ emissions based on annual CWT analyses clearly underlines the functionality of the methodology to attribute the short-term varying proportions in the measurements of the high-alpine observatories, which are influenced by weather conditions and emission levels, to their regions of origin. In summary, these results attest the method used here the ability to identify both seasonal and annual variations in CO₂ emissions from areas affecting the carbon dioxide budget of the Alpine study region.

Influences of sources and sinks on Alpine CH₄ concentrations

The next step in this work is to examine the CH₄ budget for the Alpine region, while maintaining both the study region and timeframe as well as the methodological approach in analogy to the previous CO₂ budget characterisations. The only modification required is to consider the CH₄ measurement time series instead of the CO₂ measured concentrations of the observatories.

The cross-station CWT map for the analysis of the Alpine CH₄ budget shows the division of the catchment area into a southwestern CH₄ sink region on the one hand, which includes Portugal, Spain and southern France, as well as CH₄ emitters from the northwest (England) to the south (Italy) with a focus in north-eastern Central Europe (Germany, Denmark, eastern Austria, Poland, the Czech Republic, Hungary). The CWT map of the combination of all stationary measurement data and backward trajectories over the entire period 2011–2015 therefore shows a strong northeast-southwest gradient influencing the Alpine CH₄ concentrations, according to which increases in seasonally- and trend-adjusted measured CH₄ concentrations of 15 to over 20 ppb occur during air mass advection particularly from the north of Central Europe, while air masses from the south-west have a negative impact on the CH₄ measurements with reductions of 15 ppb on average. The only exception to this north-east vs. south-west differentiation is the Alpine region, whose effect as a relative CH₄ sink is clearly visible despite the surrounding source regions. According to these findings, the Alpine core zone represents a significant sink region for both climate gases (CO₂ and CH₄) in the middle of partly emission-intensive Europe averaged over the investigation period and therefore requires a special protection status, not least from a climate protection perspective.

In the seasonally calculated concentration-weighted trajectory fields, the Iberian Peninsula is recognisable in all seasons as a large area of origin of low-methane air masses in accordance with the previous results. A plausible explanation for this is the absence of wetlands in the characteristic dry Mediterranean region. Wetlands are the most important natural source of methane and are very sensitive to climate change and weather anomalies such as higher rainfall and temperatures. The influence of heat and humidity on the intensity of CH₄ emissions can be found in the seasonal maps not only in the arid regions of south-west Europe and their low-CH₄ air masses, but also in view of the high emissions of CH₄ from regions of large, natural and artificial (mainly flooded, former mining areas) wetlands such as in Poland. The concentration-increasing influence of higher temperatures is visible in the seasonal CWT maps by more intense CH₄ emissions in summer and autumn. In the winter months (December to February), the northernmost sources (east Poland, Slovakia, Hungary and Lithuania) that are otherwise responsible for high CH₄ concentrations at the high-alpine sites disappear, as wetlands there are snow-covered and/or frozen during this time of the year and do not emit any climate gases. The emission regions visible in winter are located further to the west and can be attributed to wood and coal combustion for heating purposes, which is already known from the analogue CWT maps for CO₂. Nevertheless, the CH₄ emissions from wood firing are many times lower than the CO₂ emitted at the same time (Lavorel et al. 2007). This is also the reason why forest fires in the Mediterranean region do not show any visible emission hotspots in the seasonal CWT maps for the CH₄ measurements at the Alps, but are an important source in the analogue maps of the seasonally differentiated concentration-weighted trajectory fields for CO₂.

The fundamental phenomenon of source and sink detection with south-west Europe known by negative CH₄ contributions and emission-intensive regions in north(west), east and south of Europe is also a continuum in the yearly analysis of the influence on Alpine CH₄ concentrations. Also in accordance with the previous results, the central Alpine region is reflected in all five yearly aggregated CWT maps as an area of negative contributions to the CH₄ residuals of the Alpine observatories. The differences between the years can again be explained by the effects of the climatic factors precipitation and temperature as already done for the seasonal variations. Years and regions with high rainfall levels usually associated with warm summers and mild, wet winters have correspondingly high annual contributions to the CH₄ concentrations in the Alpine region. The magnitude of the annual differences in contributions is roughly comparable to the range of seasonal contributions and comprises, on average over the five-year study period, values ranging from -20 to +20 ppb.

Uncertainty assessment & plausibility checks

A valuation of the extent to which the methodology used here and the results obtained reliably provide conclusions about emitters and sinks of the greenhouse gases combined with their temporal variability requires not only the logical interpretation of the results, but primarily the quantification of the uncertainties associated with the results together with checking their plausibility. On the one hand, the significance and reliability of the map-based project results are assessed on the basis of the frequentation of the study area as well as the boundary layer contact of the underlying particle dispersion calculations. On the other hand, the comparison with results from the inverse modelling of greenhouse gas flows and concentrations, such as those from the Copernicus Atmosphere Monitoring Service (CAMS) and the Jena CarboScope projects, offers the opportunity to test the plausibility of the previously presented results.

In order to estimate the uncertainties associated with the results of the climate gas budget studies, the reliability of a grid cell value is directly related to the frequentation of the same grid cell. Because the larger the number of individual trajectory endpoints within a grid cell, the higher the certainty that the value calculated for that grid cell corresponds to reality and does not reflect an extreme value or exceptional status. With increasing trajectory density, the reliability of the calculated contribution from the grid cells of the study area to the climate gas measurements of the Alpine observatories increases accordingly. Overall, more than five percent of the trajectory endpoints of the particle dispersion calculations during the five-year study period 2011–2015 are within the Alpine core zone of the study area including the Alpine foothills, which certifies the results of the focus region to be highly reliable and meaningful.

In addition to the density of the trajectories, the intensity of contact with the planetary boundary layer is another important criterion for assessing the reliability of the model results. The greater the percentage of boundary layer contact within a grid cell, the greater the probability that the fundamental assumption of the model to absorb and effectively transport changes in the atmospheric trace gas concentrations is implemented when a grid cell with sources or sinks is passed. The highest values of the average percentage of boundary layer contact that the backward trajectories in the individual grid cells show during the analysed years 2011–2015 are found near the receptor observatories, where the trajectories arrive in a model intrinsic way in close proximity to the ground. Over the wider Alpine region and its foreland, at least 20 % contact with the boundary layer takes place on average during the investigation period. And even above the rest of the European mainland apart from the eastern

periphery the boundary layer contact does not fall below a mean value of more than ten percent. These comparatively high values underline that the exchange processes with the boundary layer air considered in the model take place, so that the reliability of the results can be assumed for the core study area of the Alps and the surroundings of Central Europe.

The model internal estimates of the uncertainties as well as limits of the reliability of the results are used together with comparisons with other models for the assessment of the quality of the model. The latter complete the valuation of the reliability and meaningfulness of a model in a sense of an external quality control. As there are no analogue models in the strict sense dealing with the same strategy, the results from inverse modelling of climate gas flows and concentrations from the well-known projects Copernicus Atmosphere Monitoring Service (CAMS) and Jena CarboScope have to be used for this purpose. For the comparisons, the specially aggregated data of both models are compared with the project results, so that an assessment of their plausibility can be made.

In summary, the comparison of the model results of this work with the inversely modelled CAMS climate gas flows shows very high similarities between the two models, especially in the narrower catchment area and in the basic structures. At the same time, the comparison reveals shortcomings in the CWT analyses in areas far from the receptor observatories considered. Over (to) long distances – such as to northwestern Europe, where the thinning effect of the Atlantic comes along – changes in ground-level climate gas concentrations can no longer be adequately detected by stations in the Alps and traced back by means of backward trajectories. At this point, the spatial limitations of the CWT analysis based on the Alpine measurement time series are demonstrated. But with the exception of northwestern Europe, the seasonal variations of the source and sink regions over the Central European mainland during the years 2011–2015 are reflected in high agreement with the CAMS CO₂ and CH₄ surface flows. Taking into account the fundamentally different methodological approach of the time series-based climate gas budget estimates for the detection of source and sink regions with an influence on the Alpine climate gas concentrations versus that of the inverse modelling for the quantification of global climate gas flows, the highly pronounced similarities of both model results attest trustworthy plausibility to the results of the model adapted in this work as well as the underlying methodology the functionality to characterise the Alpine CO₂ and CH₄ budgets.

Compared to the CO₂ concentration fields of the Jena CarboScope project, there are also clear similarities, such as the localisation of the highest positive CO₂ contributions or concentrations, respectively over all years in the northern regions of Central

Europe as well as their strongest manifestation during the five-year investigation period in the year of the intensive winter 2013. On the other hand, in both model simulations, negative CO₂ contributions or concentrations, respectively in the annual average are detected for south-western Central Europe. These two regions of both positive and negative CO₂ anomalies are not only reflected in their rough location, but also in their order of magnitude in very good agreement between both models. In this comparison, both model results show annual amplitudes of approximately five ppm. These parallels, despite the differing model approaches and in particular their spatial resolutions, emphasise once again the reliability of the characterisation of the Alpine CO₂ concentrations achieved in the present work, with a focus on the influence of surrounding source and sink regions as well as their temporal variability. In addition to the certificate of functionality of the applied methodology, the comparisons with inverse modelled greenhouse gas flows and concentrations highlight the sufficiently intensive coverage of the study region by the centroid paths of the particle dispersion calculations as an unconditional prerequisite for a successful implementation of the model for the identification of potential emission hotspots and sink regions. Only if the frequentation by the backward trajectories is high enough and the investigation period or as a consequence, the number of stations involved is large enough for a highly frequented footprint over the catchment area, the CWT analysis can produce meaningful maps. This limitation restricts the application of the methodology to questions with a low time resolution, which, for example, refer to seasonal or annual analyses as in the present work. For the detection of relatively stationary source and sink regions and the variability of their influence over the course of the year, the methodology on the basis of atmospheric measurement time series presented here is very well suited, provided that the sufficient extent of the data base is ensured in the form of the long-term measurements of a station or shorter time series of several stations covering only a few years.

Taking into account these requirements and the associated limitations of the methodological approach, the model presented fulfils the objectives of this work, as the plausible results and their comparisons with widely similar models demonstrate. The project results in the form of the CWT maps attest the methodology its suitability for the budgetary analysis of the climate gases CO₂ and CH₄ measured in the Alpine region, whereby the advantages such as high spatial resolution or climate gas specificity were impressively visualised. Another benefit of the model is that it does not require a priori emission data, which means that the resulting outputs can be used as a possible option for independent top-down verification of bottom-up emission inventories. In order to be able to verify these mostly nationally produced emission

statistics with the methodology here presented, it is necessary to transform the data base for a study area within national borders, in compliance with the conditions set out above. The positive model achievements of this study for the transnational investigation area of the Alpine region suggest a potentially successful transfer of the methodological approach also to areas within national borders for the purpose of an independent validation of a country's emission catalogues. This potential for future fields of application of the model can be used to review the impact of national emission control measures and thus contribute to verifying the reductions in individual countries' greenhouse gas emissions that are urgently needed to meet the objectives of the Paris Climate Agreement (United Nations 2016).

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich die Gelegenheit nutzen, mich bei allen zu bedanken, die mich bei der Erstellung dieser Arbeit sowie während der vielen Jahre Studium und Forschung, die darin eingeflossen sind, unterstützt haben. Dabei möchte ich die Sachlichkeit in der Ausdrucksform hinter mir lassen und bewusst auf die Nennung sämtlicher akademischer Grade und Amtsbezeichnungen verzichten, um die Personen persönlich anzusprechen.

Allen voran gilt mein größtes Dankeschön Ihnen, lieber Herr Jacobeit, für Ihre stetige Unterstützung und Förderung. Von der Grundvorlesung im Geographie-Studium bis hin zum Oberseminar im Masterstudium haben Sie mir nicht nur das nötige Fachwissen mit auf den Weg gegeben, sondern insbesondere meine Faszination für das Klimasystem und seine Komplexität geweckt, was maßgeblich meine weitere Orientierung in Studium und Forschung geprägt hat. Sie haben mich über viele Jahre hinweg – zunächst während meiner Hiwi-Tätigkeiten, später als Mitarbeiterin an Ihrem Lehrstuhl – als Mentor und schließlich Doktorvater betreut und mir dabei den für diese Arbeit optimalen Forschungskontext geboten. Ich hätte mir keine fachkundigere und zuverlässigere Betreuung wünschen können und danke Ihnen von Herzen für Ihre motivierenden Ratschläge, die konstruktiven wie inspirierenden Gespräche und ganz besonders für Ihr Vertrauen in mich und meine Arbeit!

Lieber Christoph, ein herzliches Dankeschön Dir für die Übernahme des Zweitgutachtens und mehr noch für Dein stets offenes Ohr bzw. Dein stetes Verneinen meiner Frage, ob ich Dich stören würde, wenn (mal wieder) Deine Expertise (vor allem mit R!) von Nöten war! Tatsächlich habe ich es Dir zu verdanken, dass diese Arbeit auf der statistischen Datenanalyse und Modellierung aufbauen kann, für die Du mich bereits vor zehn Jahren in Deinem Programmierkurs begeistern konntest. Seitdem warst Du vor meinen Fragen nicht mehr sicher und hast es dennoch geschafft, dass ich mich nicht als Greenhorn, sondern von Anfang an in der familiären Arbeitsatmosphäre des Lehrstuhls zuhause fühlte.

Als die gute Seele der AK Klima-Familie hast Du, liebe Uli, mich als Kollegin voller Fachwissen, Empathie und Tatendrang schwer beeindruckt und ich bin sehr dankbar, Dich als treue Weggefährtin und Freundin sowie nicht zuletzt als aufmerksame Korrekturleserin dieser Monographie gewonnen zu haben. Deine Anmerkungen und Verbesserungsvorschläge und insbesondere die Gespräche mit Dir, aus denen ich

immer viel Motivation, Durchhaltevermögen und Kraft mitnehmen konnte, haben entscheidend zur Fertigstellung dieser Arbeit beigetragen.

Allen KollegInnen am Lehrstuhl für Physische Geographie mit Schwerpunkt Klimaforschung in Augsburg gilt ein herzliches Dankeschön für die hervorragende Arbeitsatmosphäre und das durchweg wertschätzende Forschungsumfeld. Dabei geht mein besonderer Dank an Euch: Ena und Sev, Steffi und Andi, Olli und Philipp – für die freundliche Aufnahme in Euren Büros, Euer kritisches und konstruktives Feedback sowie das Teilen Eures Erfahrungsschatzes, die gemeinsamen Mittagspausen und die Konferenzteilnahmen als eingeschweißtes Team!

Auch außeruniversitär konnte ich stets auf die sehr gute und zuverlässige Zusammenarbeit mit den Vertretern der Projektpartner - Ludwig Ries (Umweltbundesamt) und Stephan Hachinger (LRZ) - zählen. Dank Eures Know-hows, Eurer Kreativität und Eurer Unterstützung mit Rat und Tat war es eine durchweg erfolgreiche und gewinnbringende Kooperation und immer eine Freude, gemeinsam an Projekttreffen und Konferenzen teilzunehmen. Dafür vielen lieben Dank!

Ganz besonders bedanken möchte ich mich bei Euch, Mama und Daddy, für Euren mentalen und finanziellen Beistand, Euren Rückhalt und vor allem Eure zuverlässige und tatkräftige Unterstützung insbesondere bei der Kinderbetreuung, dank denen ich meinem (Promotions-)Studium und Forschungstätigkeiten nachgehen kann! Bei Euch und bei Dir, liebe Hannah, wusste ich David immer in den besten Händen und hatte dank Euch den Kopf frei, diese Arbeit niederzuschreiben. Ich danke Euch aus ganzem Herzen dafür! Vergelt's Gott!

Meiner Familie, allen voran meinem Ehemann Robert, danke ich für die stets offenen Ohren, die Geduld und den Rückhalt, den ich für das Gelingen dieser Arbeit gebraucht habe. Für Deinen Beistand, lieber Robert, in allen und besonders den schwierigen Phasen dieser Arbeit sowie Deine immer erfolgreichen Rettungsmanöver abgestürzter Betriebssysteme oder schon verloren geglaubter Datensätze und nicht zuletzt Deinen Glaube an mich danke ich Dir aus meinem ganzen Herzen! Ohne Deine Kraft und Liebe wär's nix geworden.

Literaturverzeichnis

- Apadula F., Gotti A., Pignini 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. *Atmos. Environ.*, 37, 3757-3770.
- Baker J. (2010): A cluster analysis of long range transport pathways and associated pollutant concentrations within the UK. *Atmos. Environ.*, 44, 563-571.
- Balzani Lööv J. M., Henne S., Legreid G., Staehelin J., Reimann S., Prévôt A. S. H., Steinbacher M., Vollmer M. K. (2008): Estimation of background concentrations of trace gases at the Swiss Alpine site Jungfraujoch (3580 m asl). *J. Geophys. Res.*, 113, doi: 10.1029/2007JD009751
- 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. *Atmos. Environ.*, 39, 3719-3724.
- Bergamaschi P., Houweling S., Segers A., Krol M., Frankenberg C., Scheepmaker R. A., Dlugokencky E., Wofsy S. C., Kort E. A., Sweeney C., Schuck T., Brenninkmeijer C., Chen H., Beck V., Gerbig C. (2013): Atmospheric CH₄ in the first decade of the 21st century: Inverse modeling analysis using SCIAMACHY satellite retrievals and NOAA surface measurements. *J. Geophys. Res. Atmos.*, 118, 7350-7369.
- Brankov E., Rao S. T., Porter P. S. (1998): A trajectory-clustering-correlation methodology for examining the long-range transport of air pollutants. *Atmos. Environ.*, 32, 1525-1534.
- Brunner D., Henne S., Keller C. A., Vollmer M. K., Reimann S. (2013): Estimating European halocarbon emissions using lagrangian backward transport modeling and in situ measurements at the Jungfraujoch High-Alpine Site. In: Lin J. C., Gerbig C., Brunner D., Stohl A., Luhar A., Webley P. (Hrg.): Lagrangian modeling of the atmosphere, of geophysical monographs. AGU, Washington, DC, 207-221.
- Brunner D., Henne S., Keller C. A., Reimann S., Vollmer M. K., O'Doherty S., Maione M. (2012): An extended Kalman-filter for regional scale inverse

- emission estimation. *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 3455–3478.
- Bu J.-O., Song J.-M., Kim W.-H., Kang C.-H., Chambers S. D., Williams A. G., Lee C. (2016): Variability of Atmospheric Radon-222 and Secondary Aerosol Components in Accordance with Air Mass Transport Pathways at Jeju Island, Korea, during 2011-2014. *Bull. Korean Chem. Soc.*, 37, 841-846.
- Carslaw D. C. (2015): The openair manual – open-source tools for analyzing air pollution data. Manual for version 1.1-4, King’s College London. 287 S.
- Carslaw D. C., Ropkins K. (2012): openair – An R package for air quality data analysis. *Environ. Model. Softw.*, 27-28, 52-61.
- Cape J. N., Methven J., Hudson L. E. (2000): The use of trajectory cluster analysis to interpret trace gas measurements at Mace Head, Ireland. *Atmos. Environ.*, 34, 3651-3663.
- Chambers 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 High- and Low-Altitude Observing Stations Using Radon-222. *Aerosol Air Qual. Res.*, 16, 885-899.
- Chambers S. D., Williams A. G., Crawford J., Griffiths A. D., Krummel P. B., Steele L. P., Law R. M., van der Schoot M. V., Galbally I. E., Molloy S. B. (2015): A radon-only technique for characterising “baseline” constituent concentrations at Cape Grim. In: *Baseline Atmospheric Program Australia 2011-2013*, Publisher: Australian Bureau of Meteorology and CSIRO Marine and Atmospheric Research, Editors: Derek N., Krummel P. B., Cleland S. J., pp. TBA (in press)
- Chambers S. D., Zahorowski W., Williams A. G., Crawford J., Griffiths A. D. (2013): Identifying tropospheric baseline air masses at Mauna Loa Observatory between 2004 and 2010 using Radon-222 and back-trajectories, *J. Geophys. Res.*, 118, doi: 10.1029/2012JD018212.
- Charrad M., Ghazzali N., Boiteau V., Niknafs A. (2014): NbClust: An R package for Determining the Relevant Number of Clusters in a Dataset. *J. Stat. Softw.*, 61, 6.

- Cheng I., Xu X., Zhang L. (2015): Overview of receptor-based source apportionment studies for speciated atmospheric mercury. *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 7877-7895.
- Cheng S., Wang F., Li J., Chen D., Li M., Zhou Y., Ren Z. (2013): Application of Trajectory Clustering and Source Apportionment Methods for Investigating Trans-Boundary Atmospheric PM₁₀ Pollution. *Aerosol Air Qual. Res.*, 13, 333-342.
- Chevallier F., Broquet G., Pierangelo C., Crisp D. (2017): Probabilistic global maps of the CO₂ column at daily and monthly scales from sparse satellite measurements. *J. Geophys. Res. Atmos.*, 122, doi: 10.1002/2017JD026453
- Cleveland R. B., Cleveland W. S., McRae J. E., Terpenning I. (1990): STL: A Seasonal-Trend Decomposition Procedure Based on Loess. *J. Off. Stat.*, 6, 3-73.
- Collaud Coen M., Weingartner E., Furger M., Nyeki S., Prévôt A. S. H., Steinbacher M., Baltensperger U. (2011): Aerosol climatology and planetary boundary influence at the Jungfraujoch analyzed by synoptic weather types. *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 5931-5944.
- Crawford J., Chambers S. D., Kang C.-H., Griffiths A., Kim W.-H. (2015): Analysis of a decade of Asian outflow of PM₁₀ and TSP to Gosan, Korea; also incorporating Radon-222. *Atmos. Pol. Res.*, 6, 529-539.
- Crawford J., Chambers S. D., Cohen D. D., Dyer L., Wang T., Zahorowski W. (2007): Receptor modelling using Positive Matrix Factorisation, back trajectories and Radon-222. *Atmos. Environ.*, 41, 6823-6837.
- Cui J., Pandey Deolal S., Sprenger M., Henne S., Staehelin J., Steinbacher M., Nédélec P. (2011): Free tropospheric ozone changes over Europe as observed at Jungfraujoch (1990-2008): An analysis based on backward trajectories. *J. Geophys. Res.*, 116, doi: 10.1029/2010JD015154.
- Dlugokencky, E. J., Lang, P. M., Masarie, K. A., Crotwell, A. M., and Crotwell, M. J. (2015): Atmospheric carbon dioxide dry air mole fractions from the NOAA ESRL Carbon Cycle Cooperative Global Air Sampling Network, 1968-2014, Path: <ftp://aftp.cmdl.noaa.gov/data/tracegases/co2/flask/surface/>.

- Fang S. X., Tans P. P., Steinbacher M., Zhou L. X., Luan T. (2015): Study the regional CO₂ mole fractions filtering approach at a WMO/GAW regional station in China. *Atmos. Meas. Tech. Discuss.*, 8, 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 CO₂ at the four WMO/GAW stations in China. *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 2541-2554.
- Fleming Z. L., Monks P. S., Manning A. J. (2012): Review: Untangling the influence of air-mass history in interpreting observed atmospheric composition. *Atmos. Res.*, 104-105, 1-39.
- Folini D., Uhl S., Kaufmann P. (2008): Lagrangian particle dispersion modeling for the high Alpine site Jungfraujoch. *J. Geophys. Res.*, 113, doi: 10.1029/2007JD009558
- Forrer J., Rüttimann R., Schneiter D., Fischer A., Buchmann B., Hofer P. (2000): Variability of trace gases at the high-Alpine site Jungfraujoch caused by meteorological transport processes. *J. Geophys. Res.*, 105, 12241-12251.
- Gerilowski K., Tretner A., Krings T., Buchwitz M., Bertagnolio P. P., Belemezov F., Erzinger J., Burrows J. P., Bovensmann H. (2011): MAMAP - a new spectrometer system for column-averaged methane and carbon dioxide observations from aircraft: instrument description and performance analysis. *Atmos. Meas. Tech.*, 4, 215-243.
- Giemsa E., Jacobeit J., Ries L., Hachinger S. (2019): Investigating regional source and sink patterns of Alpine CO₂ and CH₄ concentrations based on a back trajectory receptor model. *Environ. Sci. Eur.*, 31:49, doi: <https://doi.org/10.1186/s12302-019-0233-x>
- Giemsa E., Jacobeit J. (2018): Betrachtung des regionalen CO₂-Haushalts auf Basis atmosphärischer Messreihen. Umweltbundesamt Forschungsbericht 002695, Augsburg, Dessau-Roßlau, 75 S.
- Griffiths A. D., Conen F., Weingartner E., Zimmermann L., Chambers S. D., Williams A. G., Steinbacher M. (2014): Surface-to-mountaintop transport characterized by radon observations at the Jungfraujoch. *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 12763-12779.

- Henne S., Brunner D., Oney B., Leuenberger M., Eugster W., Bamberger I., Meinhardt F., Steinbacher M., Emmenegger L. (2016): Validation of the Swiss methane emission inventory by atmospheric observations and inverse modelling. *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 3683-3710.
- Henne S., Furger M., Prévôt A. S. H. (2005): Climatology of mountain venting-induced elevated moisture layers in the Lee of the Alps. *J. Appl. Meteor.*, 44, 620-633.
- Hopke P. K. (2016): Review of receptor modeling methods for source apportionment. *J. Air Waste Manag Assoc.*, 66, 237-259.
- Hopke P. K. (2003): Recent developments in receptor modeling. *J. Chemometr.*, 17, 255-265.
- Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC) (2018): Global Warming of 1.5°C. An IPCC Special Report on the impacts of global warming of 1.5°C above pre-industrial levels and related global greenhouse gas emission pathways, in the context of strengthening the global response to the threat of climate change, sustainable development, and efforts to eradicate poverty. [Masson-Delmotte V., Zhai P., Portner H.-O., Roberts D., Skea J., Shukla P.R., Pirani A., Moufouma-Okia W., Pean C., Pidcock R., Connors S., Matthews J.B.R., Chen Y., Zhou X., Gomis M.I., Lonnoy E., Maycock T., Tignor M., Waterfield T. (eds.)]. World Meteorological Organization, Geneva, Switzerland, 562 S.
- Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC) (2013): Climate Change 2013 – The Physical Science Basis. Working Group I Contribution to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Cambridge University Press, New York, 1552 S.
- 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. Kravac (Slovenia). *Atmos. Environ.*, 41, 9273-9287.
- Keeling C. D. (1993): Global observations of atmospheric CO₂. In: Heimann M. (Hrg): The Global Carbon Cycle, Springer-Verlag, 1-29.

- Krings T., Gerilowski K., Buchwitz M., Reuter M., Tretner A., Erzinger J., Heinze D., Pluger U., Burrows J. P., Bovensmann H. (2011): MAMAP - a new spectrometer system for column-averaged methane and carbon dioxide observations from aircraft: retrieval algorithm and first inversions for point source emission rates. *Atmos. Meas. Tech.*, 4, 1735-1758.
- Kruskal W. H., Wallis W. A. (1952): Use of ranks in one-criterion variance analysis. *J Am Stat Assoc.*, 47, 583–621.
- Lavorel S., Flannigan M. D., Lambin E. F., Scholes M. C. (2007): Vulnerability of land systems to fire: interactions among humans, climate, the atmosphere, and ecosystems. *Mitig. Adapt. Strat. Glob. Change*, 12, 33–53.
- Manning A. J., O’Doherty S., Jones A. R., Simmonds P. G., Derwent R. G. (2011): Estimating UK methane and nitrous oxide emissions from 1990 to 2007 using an inversion modeling approach. *J. Geophys. Res.*, 116, doi: 10.1029/2010JD014763.
- Meirink J. F., Bergamaschi P., Krol M. C. (2008): Four-dimensional variational data assimilation for inverse modelling of atmospheric methane emissions: Method and comparison with synthesis inversion. *Atmos. Chem. Phys. Disc.*, 8, 12023–12052.
- Moody J. L. (1986): The influence of meteorology on precipitation chemistry at selected sites in the eastern United States. Ph.D. thesis, University of Michigan, 176 S.
- Philipp A., Beck C., Huth R., Jacobeit J. (2014): Development and comparison of circulation type classifications using the COST733 dataset and software. *Int. J. Climatol.*, doi: 10.1002/joc.3920.
- 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. *Atmos. Environ.*, 33, 2441-2458.
- Reimann S., Vollmer M. K., Folini D., Steinbacher M., Hill M., Buchmann B., Zander R., Mahieu E. (2008): Observations of long-lived anthropogenic halocarbons at the high-Alpine site of Jungfraujoch (Switzerland) for assessment of trends and European sources. *Sci. Total. Environ.*, 391, 224-231.

- Rödenbeck C. (2005): Estimating CO₂ sources and sinks from atmospheric mixing ratio measurements using a global inversion of atmospheric transport. Technical Report 6, Max Planck Institute for Biogeochemistry, Jena, 53 S.
- Rödenbeck C., Zaehle S., Keeling R., Heimann M. (2018): How does the terrestrial carbon exchange respond to interannual climatic variations? A quantification based on atmospheric CO₂ data. *Biogeosciences*, 15, 2481-2498.
- 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. *Atmos. Meas. Tech.*, 5, 2613-2614.
- Segers A., Houweling S. (2017): Description of the CH₄ Inversion Production Chain. ECMWF Copernicus Report, 27 S.
- Seibert P., Kromp-Kolb H., Kasper A., Kalina M., Puxbaum H., Jost D., Schwikowski M., Baltensperger U. (1998): Transport of polluted boundary layer air from the Po Valley to high-alpine sites. *Atmos. Environ.*, 32, 3953-3965.
- Seibert P., Kromp-Kolb H., Baltensperger U., Jost D. (1994): Trajectory analysis of high-alpine air pollution data. In: Gryning S.-E., Millán M. M. (Hrg): Air Pollution Modeling and Its Application X. *NATO - Challenges of Modern Society*, 18, 595-596.
- Seinfeld J. H., Pandis S. N. (2016): Atmospheric Chemistry and Physics – From Air Pollution to Climate Change. 3. Ed., Wiley, 1152 S.
- Stohl A., Forster C., Frank A., Seibert P., Wotawa G. (2005): Technical note: The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 6.2. *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 2461-2474.
- Stohl A., Eckhardt S., Forster C., James P., Spichtinger N., Seibert P. (2002): A replacement for simple back trajectory calculations in the interpretation of atmospheric trace substance measurements. *Atmos. Environ.*, 36, 4635-4648.
- Stohl A., Thomson D. J. (1999): A density correction for Lagrangian Particle Dispersion Models. *Bound-Lay. Meteorol.*, 90, 155-167.

- 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. *Atmos. Environ.*, 40, 2868-5879.
- Uglietti C., Leuenberger M., Brunner D. (2011): European source and sink areas of CO₂ retrieved from Lagrangian transport model interpretation of combined O₂ and CO₂ measurements at the high alpine research station Jungfraujoch. *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 8017-3036.
- Vereinte Nationen (2016): Übereinkommen von Paris - Rahmenübereinkommen der Vereinten Nationen über Klimaänderungen. (verabschiedet am 12. Dezember 2015, in Kraft getreten am 4. November 2016)
- Zellweger C., Forrer J., Hofer P., Nyeki S., Schwarzenbach B., Weingartner E., Ammann M., Baltensperger U. (2003): Partitioning of reactive nitrogen (NO_y) and dependence on meteorological conditions in the lower free troposphere. *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 779-796.
- Zhang F., Fukuyama Y., Wang Y., Fang S., Li P., Fan T., Zhou L., Liu X., Meinhardt F., Emiliani P. (2015): Detection and attribution of regional CO₂ concentration anomalies using surface observations. *Atmos. Environ.*, 123, 88-101.