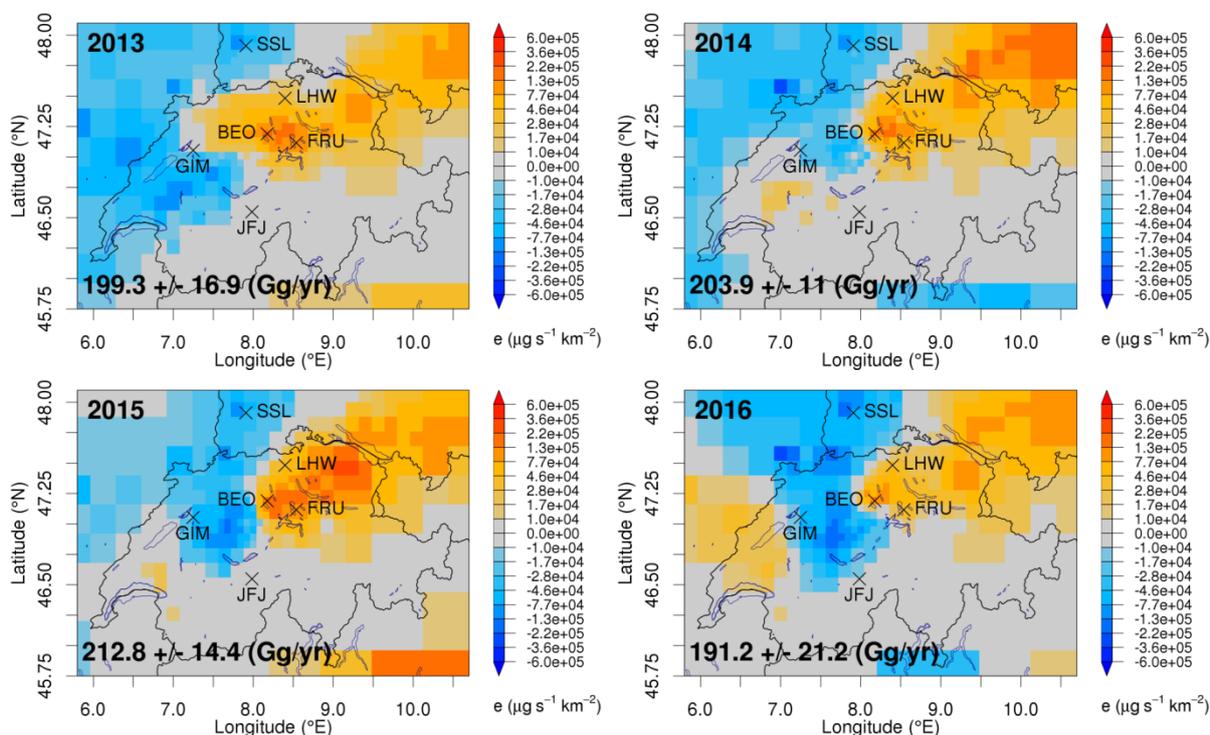


Quantifizierung der Schweizer Methanemissionen mittels atmosphärischer Messungen und inverser Modellierung

Abschlussbericht

2017-08-31



Zeitliche Entwicklung der räumlichen Verteilung der Schweizer Methan-Emissionen dargestellt als Differenzen zwischen den aus inverser Modellierung ermittelten Werten und denen des bestehenden nationalen Inventars. Die Zahlen geben jeweils das aus der Inversion ermittelte Schweizer Emissionstotal und dessen Unsicherheit an. Messstandorte sind mit Kreuzen und Stationskürzel gekennzeichnet

Abteilung Luftfremdstoffe / Umwelttechnik, Empa, 8600 Dübendorf

Stephan Henne, Dominik Brunner,
Lukas Emmenegger

Projekt im Auftrag des Bundesamtes für Umwelt (BAFU)

Impressum

Projektpartner:

BAFU (Bundesamt für Umwelt), CH-3003 Bern

Das BAFU ist ein Amt des Eidgenössischen Departements für Umwelt, Verkehr, Energie und Kommunikation (UVEK).

Empa (Eidgenössische Materialprüfungs- und Forschungsanstalt), Abteilung Luftfremdstoffe / Umwelttechnik, CH-8600 Dübendorf

Autoren des Berichts (Empa):

Stephan Henne, Dominik Brunner, Martin Steinbacher, Lukas Emmenegger

Begleitgruppe des Berichts (BAFU):

Regine Röthlisberger, Abteilung Klima

Hinweis:

Diese Studie/dieser Bericht wurde von der Empa in Zusammenarbeit mit der Begleitgruppe des Bundesamtes für Umwelt (BAFU) verfasst. Für den Inhalt sind allein die Autoren des Berichts (Empa) verantwortlich. Diese Studie/dieser Bericht wurde vom BAFU finanziell unterstützt.

Dübendorf, August 2017

Der Projektleiter



Dr. D. Brunner

Der Abteilungsleiter



Dr. L. Emmenegger

Zusammenfassung	4
Summary.....	5
1 Projektziele/Ausgangslage	6
2 Methoden	6
2.1 Messungen von Methan in der Schweiz und im benachbarten Ausland	6
2.2 Messkampagne am Standort Gäbris (AR)	8
2.2.1 Standortbeschreibung	9
2.2.2 Messaufbau und Kalibration	10
2.2.3 Datenfilterung Methanmessungen.....	11
2.3 Transportsimulationen	12
2.4 Inversionssystem	13
2.4.1 Bayesische Inversion.....	13
2.4.2 Sensitivitätsinversionen.....	14
2.4.3 Verwendung von Hintergrundzeitserien aus globalen Modellen	15
3 Explorative Datenanalyse Gäbris	18
3.1 Tagesgänge.....	20
3.2 Lokales Windsystem und Methankonzentrationen.....	21
3.3 Vergleich mit anderen Methanmessungen	23
4 Weiterentwicklung des FLEXPART-COSMO Transport Modells.....	24
4.1 Validierungs-Werkzeug für FLEXPART Simulationen.....	24
4.2 Testsimulationen mit FLEXPART-COSMO unter Verwendung verschiedener Eingabefelder	26
4.3 Änderungen in der Transportbeschreibung.....	30
4.4 FLEXPART-COSMO Simulationen für den Standort Gäbris.....	31
5 Abschätzung der Schweizer Methanemissionen mit Inversionsrechnungen.....	34
5.1 Zeitlicher Verlauf und Saisonalität der Emissionen	34
5.2 Sensitivität gegenüber Wahl der a-priori Basislinie	41
5.3 Berücksichtigung der Zusatzmessungen am Gäbris in 2016.....	44
6 Schlussfolgerungen.....	46
7 Ausblick.....	48
Danksagungen	50
Referenzen.....	50
Glossar	52

Zusammenfassung

Das BAFU erstellt jährlich nach den Richtlinien der Klimarahmenkonvention der UN ein Inventar der in der Schweiz ausgestossenen klimawirksamen Gase. In einem Vorgängerprojekt wurden die Emissionen von Methan (CH_4) bereits mit einer alternativen Methode (Inversion), basierend auf atmosphärischen Messungen von CH_4 und Transportsimulationen, validiert. Dabei wurde grundsätzlich eine gute Übereinstimmung zwischen Inventar und Inversion festgestellt. Allerdings basierte die Inversion lediglich auf Daten eines einzigen Jahres (2013), und es ergaben sich Fragen bezüglich der räumlichen Verteilung der Methanemissionen und der Robustheit der Ergebnisse. Daher sollte in dem hier vorgestellten Anschlussprojekt einerseits die Inversionsanalyse auf weitere Jahre ausgeweitet werden und andererseits Verfeinerungen am Transport- und Inversionsmodell vorgenommen werden. Zusätzlich sollten Messungen in der Nordostschweiz klären, inwieweit das Emissionsmaximum real ist, das die erste Inversion in dieser Region identifiziert hatte.

Bezüglich der zeitlichen Ausweitung der Inversionsrechnung wurde das gleiche Transportmodell und Inversionssystem angewendet wie bisher. Allerdings wurden statt bisher 32 lediglich 8 Sensitivitätsinversionen pro Jahr durchgeführt, um die strukturelle Unsicherheit des Modellsystems zu charakterisieren. Untersucht wurden die Jahre 2013 bis 2016. Dabei ergaben sich über alle Jahre gemittelte Methanemissionen für die Schweiz von $202 \pm 17 \text{ Gg yr}^{-1}$ ($1-\sigma$ Niveau). Dies stimmt sehr gut mit den im nationalen Inventar angegebenen $204 \pm 18 \text{ Gg yr}^{-1}$ überein. Betrachtet man einzelne Jahre, so traten in der Inversion Schwankungen von $191 \pm 21 \text{ Gg yr}^{-1}$ für 2016 bis $213 \pm 14 \text{ Gg yr}^{-1}$ für 2015 auf. Diese Werte liegen im Rahmen der angegebenen Unsicherheit und stellen wahrscheinlich keine realen Schwankungen in den Emissionen dar. Aus den Ergebnissen kann zurzeit kein Trend bestimmt werden, zumal dieser laut Inventar auch sehr klein ist. Auch die Saisonalität der Emissionen konnte mit Hilfe der Inversion bestimmt werden. Im Mittel über alle Jahre werden die geringsten Emissionen für die Wintermonate bestimmt (24 Gg yr^{-1} weniger als Jahresmittel). Diese Abweichung dürfte grösstenteils durch die Saisonalität in den Hofdüngeremissionen zu erklären sein und betrifft gemäss Inversion besonders Regionen mit grosser landwirtschaftlicher Nutzung. Weiterhin bestätigen die Resultate für weitere Jahre weitestgehend die aus der Vorgängerstudie bestimmte räumliche Verteilung der Methanemissionen. Diese zeigen für die landwirtschaftlich stark genutzten Regionen des westlichen Kantons Luzern und östlichen Kantons Bern geringere Werte, als aufgrund des Viehbestandes erwartet wurde (Titelbild, bzw. Abbildung 30). Höher als erwartete Emissionen wurden in allen Jahren östlich des Messstandorts Beromünster (LU) und insbesondere in der Nordostschweiz festgestellt. Die Zusatzmessungen in der Nordostschweiz (am Standort Gäbris AR) und deren Verwendung in der inversen Modellierung für das Jahr 2016 konnten das dortige Emissionsmaximum nicht bestätigen, sondern verschoben es weiter nordostwärts in den süddeutschen Raum, während das Schweizer Emissionstotal unverändert blieb.

Im vorliegenden Projekt wurden Anpassungen am verwendeten Transportmodell (FLEXPART-COSMO) vorgenommen. Einerseits wurde die Verwendung mittlerer statt momentaner Windfelder als Modellantrieb getestet, andererseits konnte eine kleine Ungenauigkeit in der Transportbeschreibung identifiziert und behoben werden. Trotz dieser Verbesserungen musste festgestellt werden, dass das Modell nach wie vor eine viel zu starke Mischung aufweist, wenn es durch hochaufgelöste Windfelder (2 km und 1 km Auflösung) angetrieben wird. Daher wurden alle Inversionen dieser Studie nach wie vor mit der Modellauflösung von 7 km durchgeführt.

Als zusätzliche Erweiterung des Inversionssystems wurde die Verwendung von globalen Methanmodellen zur Bestimmung des grossskaligen Hintergrunds als Alternative für die Messungen am Jungfraujoch implementiert. Die Methankonzentrationen aus den globalen Modellen wurden als Randbedingungen für die FLEXPART-Rechnungen verwendet, welche nur Europa abdecken. Zwei verschiedene globale Datensätze konnten für das Jahr 2013 genutzt werden. Verwendet man diese Randbedingungen ohne zusätzliche Optimierung in der Inversion, ergaben sich deutlich höhere Emissionstotale für die Schweiz. Wurde die Randbedingungen dagegen als Teil des Zustandsvektors mitangepasst, so ergaben sich sowohl bezüglich Totalwerte als auch bezüglich der räumlichen Verteilung sehr ähnliche Ergebnisse wie mit der bisherigen Methode. Da die globalen Modelle einerseits einen Bias aufweisen können und andererseits in ihrer räumlichen Auflösung limitiert sind, erscheint diese Anpassung der Randbedingungen gerechtfertigt.

Summary

Following the guidelines of the UN framework convention on climate change the Federal Office for the Environment (FOEN) annually provides an inventory of Swiss emissions of climate-relevant gases. Within a previous study the emissions of methane (CH₄) were validated by an independent approach (atmospheric inversion) based on atmospheric observations of CH₄ and transport simulations. In general, a good agreement between the emission inventory and the inversion results was established. However, this predecessor study was based on only one year of observations (year 2013) and new questions concerning the spatial distribution of the methane emissions and the robustness of the results were raised. Consequently, the follow-up study presented here aimed at extending the analysis for additional years and refining the transport and inverse modelling. In addition, supplementary atmospheric observations in north-eastern Switzerland were supposed to clarify if the unexplained emission maximum, determined in this area within the previous analysis, is realistic.

In terms of a temporal extension of the previous study the same transport model and the same inversion system as before were applied. In contrast to the previous study, the number of sensitivity inversions, which were run to characterise the uncertainty of the inversion system, had to be reduced from 32 to 8. Overall the years 2013 to 2016 were analysed and mean annual emissions of methane from Switzerland were determined to $202 \pm 17 \text{ Gg yr}^{-1}$ (1- σ level). This value is in very good agreement with the one given in the national inventory of $204 \pm 18 \text{ Gg yr}^{-1}$. With regard to individual years, inversion results varied from $192 \pm 21 \text{ Gg yr}^{-1}$ in 2016 to $203 \pm 13 \text{ Gg yr}^{-1}$ in 2015. These values fall within the range covered by the given uncertainties and are not likely to present real year-to-year emission variability. Currently, these results don't allow estimating a temporal trend in the emissions. This is also made difficult by the fact that any expected trend (see inventory) is much smaller than the given uncertainties. For all years the estimated methane emissions were smallest for the winter months (24 Gg yr^{-1} smaller than the annual mean). These seasonal differences most probably are related to the seasonality of emissions from manure management and are, according to the inverse modelling, most pronounced in areas with intensive agricultural activity. In addition, the results of the current study, extended by several years, to a large degree confirm the spatial distribution of methane emissions as obtained from the previous study. These show lower than expected emissions in the agricultural areas of the cantons of Lucerne and Berne (see title page and Figure 30). For all years, higher than expected emissions were estimated for areas east of the measurement location of Beromünster (LU) and especially in north-eastern Switzerland. However, the supplementary observations in north-eastern Switzerland (at the Gäbris site, AR) and their use in the inverse modelling for the year 2016 could not confirm the emission maximum at the same place, but moved the emission maximum further north-eastwards into southern Germany. At the same time the use of the additional observations did not affect the estimate of the Swiss total emissions.

During the current project modifications to the transport model (FLEXPART-COSMO) were applied. On the one hand the use of average instead of instantaneous input wind fields was tested. On the other hand, inaccuracies in the model's transport description could be identified and resolved. Despite these improvements it had to be concluded that the model was still too diffusive when higher resolution wind fields (2 km and 1 km horizontal resolution) were used. Consequently, all inverse estimates presented here are based on the 7 km resolution of the model, which was previously shown to perform accurately.

The use of global methane simulations providing larger scale boundary conditions for the regional inversion system was implemented as an alternative to the previously used observation-based approach. The methane concentrations provided by the global-scale models were used as boundary conditions for the European domain, which was covered by FLEXPART-COSMO. Two different global simulations were available for the year 2013. Using either of these sets as fixed boundary conditions resulted in considerably larger Swiss emissions. However, if the boundary conditions were optimised as part of the inversion (as done previously for the observation-based approach) similar results to base inversion were obtained, both with respect to spatial distribution as well as Swiss emission total. Since the global models are potentially biased as well as limited in resolution, including the boundary conditions in the inversion seems justified.

1 Projektziele/Ausgangslage

Die Schweiz erstellt jährlich nach den Richtlinien der Klimarahmenkonvention der UN ein Inventar der in der Schweiz ausgestossenen klimawirksamen Gase (National Inventory Reporting, NIR, und Common Reporting Format, CRF, tables) und rapportiert dieses an die zuständigen internationalen Gremien (FOEN, 2017). Laut diesem Inventar tragen nach Kohlenstoffdioxid die Methanemissionen den nächst grössten Anteil an den gesamtschweizerischen Treibhausgasemissionen (11 % in 2015) (FOEN, 2017). Für das Jahr 2015 beliefen sich laut CRF die anthropogenen Methanemissionen auf 204 Gg yr^{-1} . Die Unsicherheiten im Methaninventar sind vergleichsweise gross (9 %, 1σ Niveau), da diese Emissionen hauptsächlich durch mikrobielle Prozesse und diffuse Verluste entstehen, die nicht wie bei Kohlenstoffdioxid (CO_2) durch Handelsstatistiken erfassbar sind, sondern aus einzelnen Quelluntersuchungen auf die Schweiz hochskaliert werden müssen.

Im Rahmen eines ersten Validierungsprojekts (im Folgenden Vorgängerstudie genannt) der Schweizer Methanemissionen wurden erstmals für das Jahr 2013 unabhängige Emissionstotale und räumliche Verteilungen für die Schweiz mithilfe von atmosphärischen Messungen und inverser Modellierung gewonnen (Henne et al., 2015; Henne et al., 2016). Diese Studie konnte das im NIR enthaltene Schweizer Emissionstotal von 206 Gg yr^{-1} für das Jahr 2013 weitestgehend bestätigen und kam auf ein Resultat von $196 \pm 18 \text{ Gg yr}^{-1}$. Die angegebene Unsicherheit wurde dabei aus einer Reihe von Sensitivitätsinversionen gewonnen und lag unter der im NIR angegebenen. Neben dieser Bestätigung des NIR traten aber auch einige Differenzen zu Tage. Einerseits wurden Unterschiede zum räumlich aufgelösten und auf den NIR Totalen basierenden Emissionskatasters (Hiller et al., 2014) festgestellt. Kleiner als erwartete Emissionen traten dabei für die landwirtschaftlichen Regionen der Kantone Luzern, Zürich und Thurgau zu Tage, während erhöhte Emissionen für die Nordostschweiz (St. Gallen, Appenzell) auftraten. Andererseits konnte eine klare Saisonalität der Emissionen aus den Inversionen bestimmt werden, die die niedrigsten Werte im Winter verortete und die höchsten im Frühjahr. Dies wurde auf verringerte Hofdüngeremissionen im Winter und gesteigerte Emissionen aus der Nutztierhaltung im Frühjahr zurückgeführt und deckt sich weitestgehend mit dem Prozessverständnis dieser Emissionsquellen. Es zeigte sich in der Vorgängerstudie allerdings auch, dass die verwendete regionale Inversion recht sensitiv gegenüber der Beschreibung einer sogenannten Konzentrationsbasislinie war, die den Anteil des nicht explizit simulierten Methans im Hintergrund wiedergibt.

Im Rahmen dieses Anschlussprojektes sollten die Angaben des NIR für weitere Jahre validiert werden, was auch einer Überprüfung der bisherigen Inversionsergebnisse dient. Dazu wurde die gleiche Methode wie in der Vorgängerstudie auf Messungen aus den Jahren 2013 bis 2016 angewandt. Ausserdem sollte speziell der Frage nach den laut Inversion erhöhten Emissionen in der Nordostschweiz nachgegangen werden, für deren Auftreten bislang keine Emissionsquelle verantwortlich gemacht werden konnte. Diesbezüglich wurde eine Messkampagne an einem Standort in der Nordostschweiz durchgeführt und die gewonnenen Daten analysiert und zusätzlich in der inversen Modellierung verwendet. Schliesslich wurden verschiedene Weiterentwicklungen des Modellsystems bezüglich Transportmodellierung und Basislinienbehandlung getestet.

2 Methoden

In diesem Abschnitt werden die Methoden erläutert, die für die Bestimmung der Schweizer Methanemissionen aus atmosphärischen Messungen notwendig und in dieser Studie zur Anwendung gekommen sind. Einerseits sind dies die Methanmessungen selbst, andererseits werden die durchgeführten Transportsimulationen und Anpassungen am Inversionssystem beschrieben. Eine ausführlichere Abhandlung der Inversionsmethodik findet sich im Schlussbericht der Vorgängerstudie (Henne et al., 2015).

2.1 Messungen von Methan in der Schweiz und im benachbarten Ausland

Im Rahmen des SNF Sinergia Projekts CarboCount-CH wurde ein Messnetz von vier atmosphärischen Treibhausgasmessungen im Schweizer Mittelland aufgebaut, ergänzend zur bestehenden Station auf dem Jungfraujoch. Nach Abschluss des Projekts wurde die Messung am Standort Frübüel wieder eingestellt. Die Messungen an den anderen Standorten werden bis auf weiteres weitergeführt, wobei

die Universität Bern für Beromünster und Gimmiz verantwortlich ist und die Empa für Lägern-Hochwacht. Alle vier Stationen (Abbildung 1 und Tabelle 1) wurden mit PICARRO (Santa Clara, California, USA) "cavity ring-down" Spektrometern (CRDS) ausgerüstet, die parallel CO_2 , CH_4 , H_2O und (ausser Frübüel und Gimmiz) CO messen. In Gimmiz wurde für die CO Messung ein Horiba APMA360 installiert. Zusätzliche meteorologische Sensoren (Temperatur, Feuchte, Druck, Wind) wurden ebenfalls installiert (Beromünster und Gimmiz; Gill MetPak II, Gill Instruments Ltd., Hampshire, United Kingdom) bzw. konnten von bestehenden Messnetzen übernommen werden (MeteoSwiss am Standort Lägern-Hochwacht und Swiss FLUXNET am Standort Frübüel). Alle Messungen wurden laufend gegen internationale Standards kalibriert (WMO X2007 (Zhao and Tans, 2006) für CO_2 , WMO X2004 für CH_4 (Dlugokencky et al., 2005) und WMO X2004 für CO). Die dafür verwendeten Kalibrationsgasflaschen wurden an der Empa erzeugt und eingemessen. Zusätzlich zu den Kalibrationsgasen wurde regelmässig ein Zielgas vermessen, welches nicht in der Kalibration verwendet wird. Diese Messungen erlauben eine unabhängige Abschätzung der Genauigkeit des Messsystems auf 0.07 ppmv für CO_2 , 0.5 ppbv für CH_4 und 2 ppbv für CO . Alle hier angegebenen Methanwerte repräsentieren Molfraktionen in trockener Luft. Eine genauere Beschreibung der Messungen findet sich bei Oney et al. (2015) und Berhanu et al. (2015).

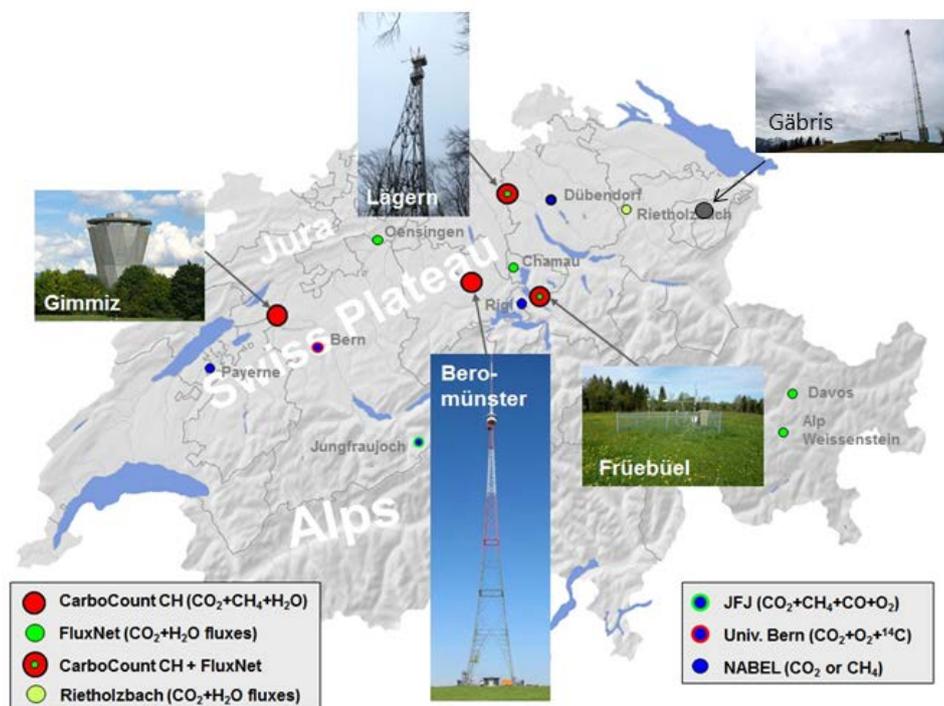


Abbildung 1: Übersicht über das Messnetz von CarboCount-CH mit den 4 Standorten Lägern-Hochwacht (seit August 2012), Beromünster (seit November 2012), Frübüel (November 2012 bis Februar 2015) und Gimmiz (seit Februar 2013) und dem Zusatzstandort Gäbris (Mai bis November 2016).

Zusätzliche Methanmessungen wurden im Rahmen dieses Projekts in der Nordostschweiz am Standort Gäbris durchgeführt und werden im Detail in Abschnitt 2.2 besprochen. Des Weiteren wurden in dieser Studie die Methanmessungen der GAW Stationen Jungfrauoch (Empa) und Schauinsland im Schwarzwald (UBA) herangezogen. Diese dienen einer besseren räumlichen Eingrenzung des Einflusses der CarboCount-CH Stationen auf das Methanemissionsfeld innerhalb der Schweiz sowie im angrenzenden Ausland. Ausserdem wird aus den Messungen am Jungfrauoch eine Basislinie der Konzentration gewonnen, die für die Beschreibung des Gesamtmethans in der Transportmodellierung notwendig ist (siehe Abschnitt 2.3).

Eine detaillierte Charakterisierung der Messstandorte findet sich in Henne et al. (2015). An dieser Stelle sei lediglich nochmals darauf hingewiesen, dass der Turmstandort Beromünster sowie der auf der Lägernspitze gelegene Standort Lägern-Hochwacht am besten geeignet sind, um das zentrale Schweizer Mittelland zu beobachten, während die höher gelegenen Bergstationen Schauinsland und insbesondere Jungfrauoch geeignet sind, die grossräumige Methanvariabilität abzudecken. Dies ist deutlich in den in Abbildung 2 gezeigten Zeitserien zu erkennen. In dieser Darstellung verlaufen die Konzentra-

tionen von Beromünster und Lägern-Hochwacht mit wenigen Ausnahmen nahezu parallel und weisen typische Methankonzentrationen im Bereich 1900 bis 2200 ppbv auf, während die Bergstationen eine deutlich geringere mittlere Konzentration und Variabilität zeigen (1850 bis 2000 ppbv bzw. 2100 ppbv für Schauinsland). Gimmiz und Fruebüel sind bodennahe Messstandorte, die stark von lokalen Methanemissionen und deren Akkumulation in der nächtlichen Grenzschicht beeinflusst sind. Die Methandaten vom temporären Standort Gäbris lassen sich vom Konzentrationsbereich mit Beromünster und Lägern vergleichen und liegen trotz gleicher Höhenlage etwas über denen von Schauinsland. Für die Emissionsinversion wurden wie bisher lediglich die Daten am Nachmittag (12:00 bis 18:00 UTC) für die Stationen im Mittelland verwendet, während für die Bergstationen nur die nächtlichen Daten (00:00 bis 06:00 UTC) zum Einsatz kamen. Die in Gimmiz und Fruebüel gewonnenen Methandaten wurden wie bisher und aufgrund ihrer lokal beeinflussten, schwierig zu simulierenden Konzentrationen, lediglich als Validierungsstandorte in der Emissionsinversion verwandt und werden in dieser Studie nicht weiter diskutiert.

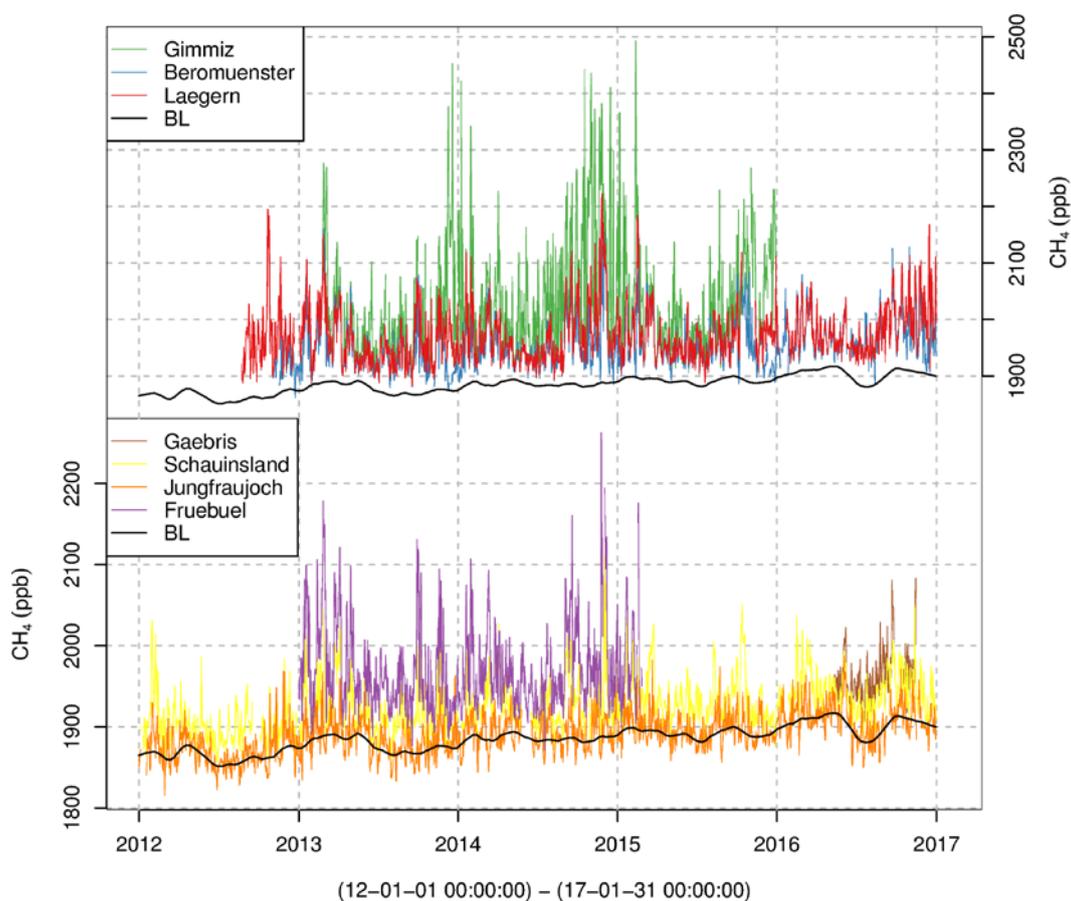


Abbildung 2: Tagesmittel der Methankonzentration an allen in dieser Studie verwendeten Standorten. Zusätzlich ist die aus den Jungfrauoch Daten gewonnene Basislinie (schwarz) gezeigt.

2.2 Messkampagne am Standort Gäbris (AR)

Um die Frage nach potentiell erhöhten Methanemissionen in der Nordostschweiz zu klären, wurden im Sommer 2016 zusätzliche atmosphärische Methanmessungen in dieser Region durchgeführt. Hierzu sollte ein Standort ausgewählt werden, der möglichst im direkten Einflussgebiet der nordostschweizerischen Emissionen liegt, bereits über eine vorhandene Infrastruktur verfügt und möglichst erhöht liegt, um ähnlich wie an der Station Lägern-Hochwacht lokale Einflüsse zu minimieren. Die Wahl fiel schliesslich auf den Standort Gäbris im Appenzell. Dieser verfügte bereits sowohl über einen 27.5 m hohen Sende-/Messturm, der für die Montage eines Gaseinlasses genutzt werden konnte (Abbildung 3), als auch über meteorologische Standardmessungen (MeteoGroup), die für die Auswertungen der Treibhausgasmessungen zur Verfügung gestellt wurden. Neben dem Turm verfügt der Standort über einen

Technikraum, der von der Gemeinde Gais (AR) zur Nutzung frei zur Verfügung gestellt wurde. Gäbris selbst ist eine der ersten höheren Erhebungen (1244 m ü.M) am Nordrand des Appenzell und bietet als solche eine freie Anströmung aus nördlichen Richtungen und damit die Möglichkeit, potentielle Quellregionen (Stadt St. Gallen, Bodensee, Appenzeller Land, Rheintal) zu unterscheiden.



Abbildung 3: Installation des Gaseinlasses an der Turmspitze am Gäbris. Das Technikgebäude schliesst sich am rechten, unteren Rand des Bildes an.

2.2.1 Standortbeschreibung

Der Sende-/Messturm am Gäbris befindet sich annähernd auf dem höchsten Punkt des Berges und ist umgeben von einem als Sommerweide genutzten alpinen Grasland. In einer Umgebung von 5 km um den Standort ist die einzig geschlossene Siedlung der Ort Gais im Südosten, der allerdings gut 300 Höhenmeter unterhalb liegt (Abbildung 4). Ansonsten ist die Umgebung gekennzeichnet durch eine Mischung aus landwirtschaftlichen Flächen (meist Grasland) und Nadelwäldern, die auch einzelne landwirtschaftliche Betriebe ausserhalb der geschlossenen Ortschaften enthält. Die Topographie ist komplex und fällt in nördlicher, westlicher und südlicher Richtung steil ab, während sich ein Höhenrücken Richtung Osten erstreckt. Der Ballungsraum der Stadt St. Gallen befindet sich in nordwestlicher Richtung, die Bodenseeregion zwischen Rorschach und Bregenz in nördlicher bis nordöstlicher Richtung und das Rheintal in östlicher Richtung.

In der direkten Umgebung des Standorts liegen zwei landwirtschaftliche Betriebe, die beide Rinder und Milchkühe halten (Abbildung 5). Beide Betriebe befinden sich in einer Entfernung von ca. 300 m zum Messtandort und liegen 40 bzw. 70 m unterhalb des auf der Turmspitze installierten Gaseinlasses. Weiterhin waren nur wenige Rinder (<10) während der Monate Juni bis Mitte August auf der Sommerweide in der direkten Umgebung des Turms, während das übrige Grasland teils zur Heuernte eingesetzt und nicht beweidet wurde. Insgesamt wurde erwartet, dass diese wenigen lokalen Quellen insbesondere aufgrund der vertikalen Entfernung zum Gaseinlass nur eine untergeordnete Rolle spielen würden. Eine weitere Analyse/Datenfilterung aufgrund lokaler Quellen ist in Abschnitt 2.2.3 beschrieben.

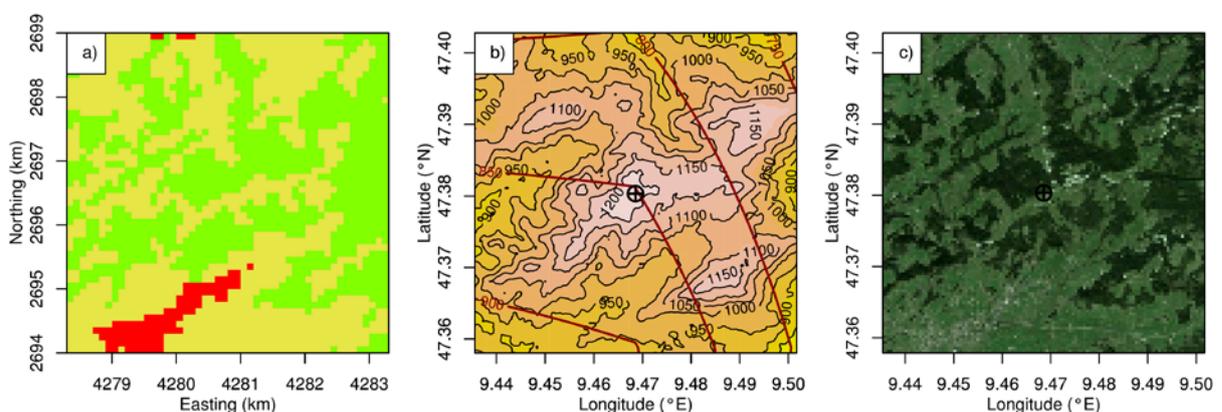


Abbildung 4: Umgebungskarten (ca. 5 km x 5 km) der Station Gäbris: a) Landnutzungstyp nach CORINE2006, b) Geländehöhe nach ASTER, c) GoogleMaps© Luftbildaufnahme. Die Landnutzungstypen sind wie folgt: bebautes

Gebiet: rot; landwirtschaftliche Flächen: beige und braun; Wälder: grün. Zusätzlich sind in Teilbild b) die Geländehöhen, wie sie im COSMO7 Modell repräsentiert sind, als rote Isolinien angegeben.

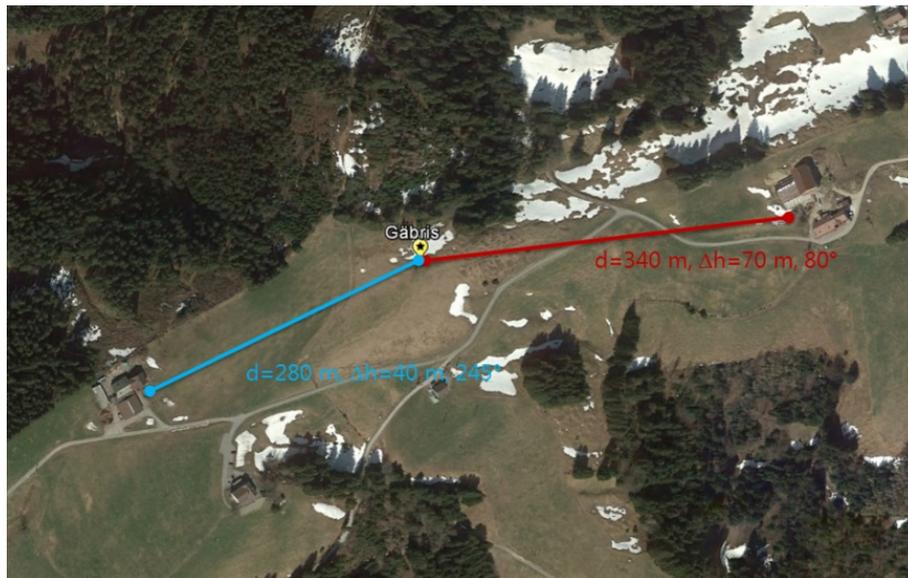


Abbildung 5: GoogleMaps© Luftbildaufnahme der direkten Umgebung des Messstandorts Gäbris. Eingezeichnet sind die Abstände (d : horizontal, Δh : vertikal) zu den nächsten landwirtschaftlichen Betrieben mit Rinder- und Milchkuhhaltung. Die Gradzahlen zeigen die Windrichtungen, bei denen eine direkte Advektion lokaler Emissionen zum Gaseinlass zu erwarten wäre.

2.2.2 Messaufbau und Kalibration

Die Methanmessungen an der Station Gäbris wurden am 10. Mai 2016 gestartet und (mit kleinen Unterbrüchen) bis zum 14. November 2016 weitergeführt. Durchgeführt wurden sie mit Hilfe eines Picarro G1301 (Santa Clara, California, USA) "cavity ring-down" Spektrometers. Dieses ist das Vorgängermodell des an den meisten CarboCount-CH Stationen zum Einsatz kommenden Messgeräts und liefert neben CH_4 ebenfalls CO_2 -Messwerte, jedoch kein Kohlenstoffmonoxid (CO). Das Gerät wurde im Technikraum des Sendeturms installiert und sog über einen ca. 40 m langen Gaseinlass (12 mm Synflex) Aussenluft von der Turmspitze (15 l/min Flussrate) (Abbildung 6). Es wurden 3 zertifizierte Referenzgase am Gerät installiert (vor und nach dem Einsatz vermessen gegen NOAA Standards, WMO X2004 Skala). Diese wurden automatisch in regelmässigen Abständen auf das Gerät gegeben, um eine kontinuierliche Kalibration der gemessenen Rohdaten zu gewährleisten. Dabei wurden ein tiefes und ein hohes Referenzgas alle 5 Tage für 15 Minuten gemessen, während das dritte Zielgas alle 30 Stunden ebenfalls für 15 Minuten gemessen wurde. Die 5-tägigen Messungen des Referenzgaspaars wurden anschliessend zur Gewinnung von Kalibrationsparametern (Steigung und Achsenabschnitt) verwendet, während der Vergleich der kalibrierten Zielgasmessungen mit dessen Referenzwert als Mass für die Messgenauigkeit verwendet wurde. Letztere wurde für CH_4 zu <0.3 ppbv und für CO_2 zu <0.05 ppmv ermittelt, was leicht besser ist, als die Ergebnisse der bisherigen CarboCount-CH Messungen und klar die Genauigkeitsanforderungen für die weitere Analyse erfüllt.

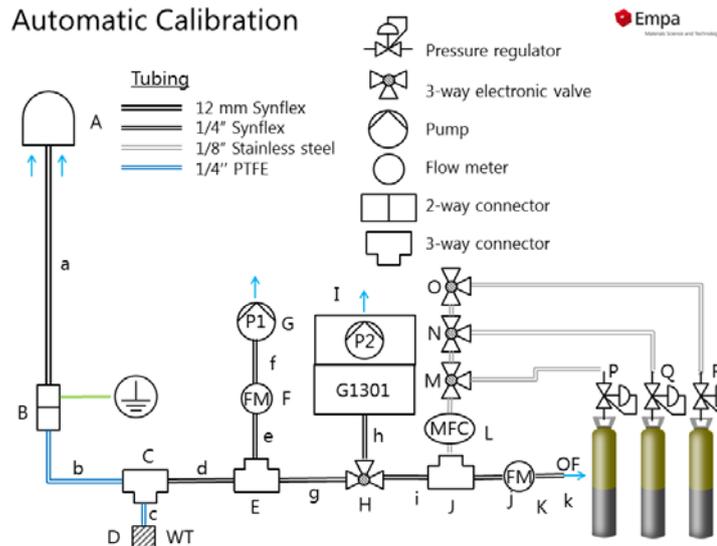


Abbildung 6: Flussdiagramm der am Gäbris installierten Methanmessungen. A: Gaseinlass; P1: Spülpumpe; G1301: Picarro Methanalysator; P2: interne Pumpe; H, M-O: vom Analysator geschaltete Ventile; MFC: Gasflusskontrolle; P-R: Referenzgase.

2.2.3 Datenfilterung Methanmessungen

Trotz der Höhe des Gaseinlasses 27.5 m über Grund wurden ab und zu kurze Phasen mit erhöhten Methankonzentrationen und starker Variabilität gemessen. Diese wurden wahrscheinlich von lokalen Quellen verursacht. Eine Filterung dieser Ereignisse mit Hilfe der beobachteten Windgeschwindigkeiten und -richtungen, die eine direkte Anströmung von den umliegenden landwirtschaftlichen Betrieben ausschliessen sollte, resultierte nicht in einer zufrieden stellenden Filterung dieser Verschmutzungsergebnisse. Stattdessen wurde eine direkte Filterung allein basierend auf den gemessenen, hochfrequenten (0.5 Hz) Rohdaten durchgeführt. Dazu wurde die Zeitserie in 2-Minuten Fenster unterteilt und für jedes Fenster eine Bestimmung der lokalen „Hintergrundkonzentration“, wie bei Ruckstuhl et al. (2012) beschrieben, durchgeführt. Es wurden dazu nicht-symmetrische Gewichte verwendet, um die Varianz des Hintergrunds zu bestimmen, so dass positive Ausreisser weniger stark berücksichtigt werden. Iterativ angewandt kann so ein robustes Hintergrundsignal und dessen Unsicherheit aus einer verschmutzten Zeitserie bestimmt werden. Messpunkte, die sich ausserhalb des Unsicherheitsbereichs befanden, wurden als verschmutzt gekennzeichnet und für die weitere Analyse nicht mehr verwendet.

Abbildung 7 zeigt beispielhaft die gemessenen Rohdaten für den 04.08.2016. Deutlich ist eine Phase hoher Methankonzentrationen und hoher Variabilität zwischen 04:00 und 07:00 UTC zu erkennen. Während dieser Phase werden viele Messungen ausserhalb des ermittelten Unsicherheitsbereichs des Hintergrundsignals verworfen, während ausserhalb dieser Phase nur wenige Datenpunkte entfernt werden. Gleichzeitig zeigt das Beispiel, dass die Anzahl der entfernten Punkte klein ist. Als Begründung für die Wahl eines 2-Minuten Fensters kann angeführt werden, dass man ein Fenster wählen muss, das einerseits möglichst breit genug ist, um noch eine ausreichende Anzahl nicht verschmutzter Messungen zu enthalten, und andererseits schmal genug ist, um tatsächliche Änderungen in der Methankonzentration, die nicht durch lokale Einflüsse bestimmt sind, zu berücksichtigen. Ein Beispiel für letzteres ist ebenfalls in der abgebildeten Zeitserie gegen 02:00 UTC zu erkennen, als die Methankonzentrationen sehr schnell anstiegen und für ca. 20 Minuten auf hohem Niveau verblieben. Dieses Ereignis ist wahrscheinlich nicht auf lokale Verschmutzung zurück zu führen, sondern eher auf den kurzfristigen Eintrag von verschmutzten Grenzschichtluftmassen auf das Höhenniveau von Gäbris.

Neben dieser rein auf den Methanmessungen basierenden Filterung wurden lediglich Episoden während Stationsbesuchen oder während anderer Arbeiten am Sendemast entfernt. Eine zusätzliche Filterung nach Windrichtung- und -geschwindigkeit wurde nicht vorgenommen.

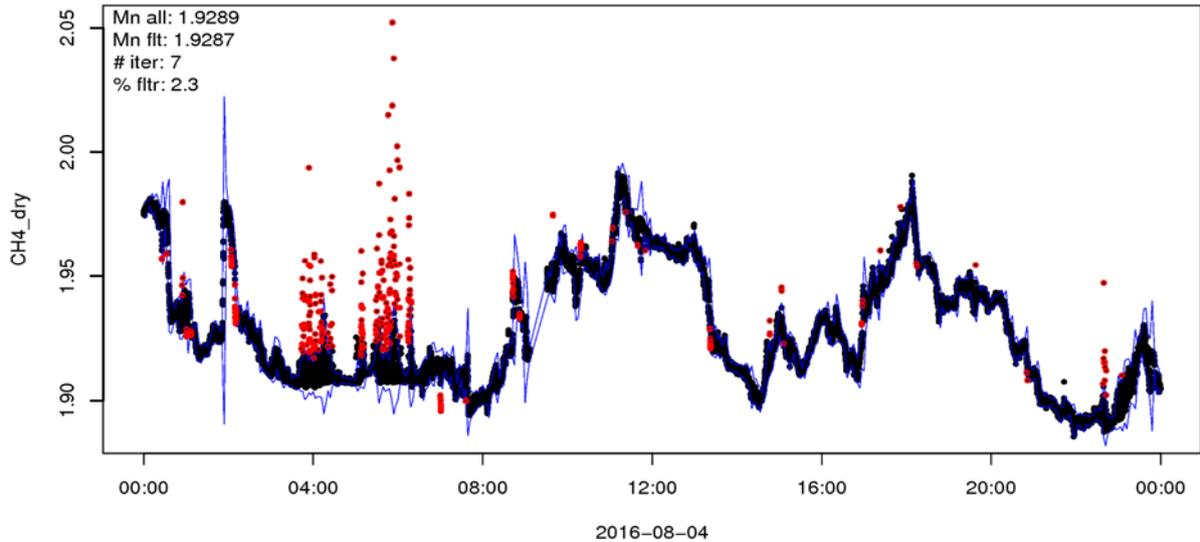


Abbildung 7: Beispiel der am Gäbris gemessenen Methan-Rohdaten (schwarze Punkte; 2-Sekunden Auflösung; Einheiten ppmv nicht kalibriert) für den 04.08.2016. Die blauen Bänder geben den Bereich für gültige Methanbeobachtungen. Messungen die ausserhalb dieses Bandes liegen (rote Punkte) wurden für die weitere Datenaggregation und Kalibration verworfen.

2.3 Transportsimulationen

Der Transport von CH_4 von den Emissionsquellen zu den Messstationen wurde mit dem Lagrange'schen Partikel Dispersion Modell (LPDM) FLEXPART (Stohl et al., 2005) simuliert. Es wurde die modifizierte Version von FLEXPART für den Einsatz mit Eingabedaten des Numerischen Wettervorhersage Modells (NWP) COSMO verwendet. Diese Simulationen wurden mit stündlichen Analysefeldern wie sie von der MeteoSchweiz erzeugt werden, angetrieben. Dabei kamen die COSMO7 Analysefelder mit einer horizontalen Auflösung von 7 km x 7 km zum Einsatz (COSMO7). Das COSMO7 Gitter deckt den grössten Teil Westeuropas ab. Zusätzlich wurden Tests mit FLEXPART-COSMO und der Verwendung höher aufgelöster COSMO Felder durchgeführt (COSMO2: 2 km x 2 km und COSMO1: 1 km x 1 km). Diese Tests werden in Abschnitt 4 diskutiert.

Anstelle einer Vorwärtssimulation, die den Weg einer Emission in der Atmosphäre beschreiben würde, wurde FLEXPART für diese Studie im Rückwärtsmodus betrieben. Ausgehend von den Messstationen (Startpunkt der Rückwärtssimulationen) wird der atmosphärische Transport in der Zeit rückwärts verfolgt. Das Modell liefert in diesem Modus kein Konzentrationsfeld, sondern ein Sensitivitätsfeld, welches angibt, wie sensitiv eine Messung am Startpunkt (Messstation) gegenüber einer Emission an einem beliebigen Punkt im Modellgebiet ist. Bei Substanzen, die keine Umwandlung in der Atmosphäre erfahren, kann aus dem Sensitivitäts-, $m_{i,j}$, und Emissionsfeld, $E_{i,j}$, direkt eine Molfraktion, χ_t , am Rezeptorpunkt (Messstandort) berechnet werden. Allerdings beschreibt diese Molfraktion lediglich den Teil der Gesamtmolfraktion, χ , der während des Zeitraums der Transportsimulation aufgenommen wurde. Um die Gesamtmolfraktion zu erhalten, muss eine Basismolfraktion, χ_b , addiert werden, die den grossskaligen Konzentrationshintergrund beschreibt. Letztere ergibt sich aus dem Mittel der Molfraktionen, χ_k , an den Endpositionen der im Modell simulierten Partikel, welche zum Beispiel durch räumliche Interpolation eines 3-D Feldes einer globalen Methansimulation berechnet werden können. Die Gesamtmolfraktion ergibt sich somit als Summe der Beiträge der Emissionen und des Hintergrunds wie folgt

$$\chi = \underbrace{\sum_{i,j} m_{i,j} E_{i,j}}_{\chi_t} + \frac{1}{K} \underbrace{\sum_k \chi_k}_{\chi_b} \quad (1)$$

wobei K die Anzahl Modellpartikel angibt. Für die vorangegangene Studie wurden die Basismolfraktionen, χ_b , nicht aus grossskaligen Modellen bestimmt, da diese meist nicht zeitnah zur Verfügung stehen, sondern es wurde die aus den Beobachtungen vom Jungfrauoch bestimmte Basislinie verwen-

det. Im Abschnitt 2.4.3 und 5.2 wird beschrieben, wie χ_b aus zwei verschiedenen globalen Transportmodellen gewonnen wurde und welchen Einfluss dies auf die Inversionsergebnisse hat.

Für die vorliegende Studie wurden Sensitivitäten für 3-stündige Intervalle berechnet. Dazu wurden an jedem Startpunkt und für jedes Intervall 50'000 Modellpartikel entlassen und für 96 Stunden wurde ihr Transport in der Atmosphäre verfolgt, sofern Partikel nicht vorzeitig das begrenzte Modellgebiet verliessen.

Die gewählte Modellauflösung kann die komplexe Topographie an den Messstandorten nur bedingt wiedergeben. Es ergibt sich also das Problem, eine geeignete Höhe über Modellgrund zu wählen, an der die Partikel gestartet werden sollen. Bei grossen Differenzen zwischen Modell- und realer Topographie sollte die Starthöhe zwischen der wirklichen Messhöhe über Grund und der tatsächlichen Höhe über Meer gewählt werden. Für die vorliegende Studie wurden für die erhöht gelegenen Stationen je zwei Starthöhen evaluiert und in der Emissionsinversion verwendet, um diesen Teil der Modellunsicherheit besser zu quantifizieren. Die gewählten Starthöhen sind in Tabelle 1 angegeben. Die Starthöhen, die eher der Höhe über Grund entsprechen, werden im Folgenden mit „tief“, während die Starthöhen, die der Höhe über Meer entsprechen, mit „hoch“ bezeichnet werden.

Emissionssensitivitäten wurden auf einem gröberen Gittern mit einer Auflösung von $0.16^\circ \times 0.12^\circ$, das Westeuropa umfasst, ausgegeben. Zusätzlich wurde ein feineres Gitter für die kleinere Region über dem Alpenraum mit einer Auflösung von $0.02^\circ \times 0.015^\circ$ gespeichert. Für beide Gitter wurden für FLEXPART-COSMO Emissionssensitivitäten zwischen dem Boden und 50 m über Grund evaluiert.

Tabelle 1: Übersicht über die Messstandorte des CarboCount-CH Messnetzes und der zusätzlich einbezogenen Messstationen, inklusive Höhen der Modelltopographie und FLEXPART Starthöhen.

Station	ID	Länge (°E)	Breite (°N)	Absolute Höhe (m ü.M.)	Einlasshöhe (m ü.G.)	COSMO7 Höhe (m ü.M.)	FLEXPART Starthöhen (m)
Beromünster	BEO	8.1755	47.1896	797	12, 45, 72, 132, 212	615	212 ü.G. 1014 ü.M.
Lägern Hochwacht	LHW	8.3973	47.4822	840	32	492	100-200 ü.G. 200-300 ü.G.
Früebüel	FRAU	8.5378	47.1158	982	5	711	50 -100 ü.G. 982 ü.M.
Gimmiz	GIM	7.2480	47.0536	443	32	496	32 ü. M.
Jungfrauoch	JFJ	7.9851	46.5475	3580	3	2650	3100 ü.M.
Schauinsland	SSL	7.9167	47.9000	1205	10	750	980 ü.M.
Gäbris	GBR	9.4686	47.3803	1244	27	860	300 ü.G. 1271 ü.M.

2.4 Inversionssystem

2.4.1 Bayesische Inversion

Eine detaillierte Beschreibung des Bayesischen Inversionssystems, das für die Bestimmung der Schweizer Methanflüsse verwendet wurde, findet sich in Henne et al. (2015) und in Henne et al. (2016). An dieser Stelle sollen lediglich die wichtigsten Komponenten erwähnt werden.

Die a-posteriori Emissionen, x , werden in der Bayesischen Inversion durch das Minimieren der folgenden Kostenfunktion gewonnen

$$J = \frac{1}{2}(x - x_b)^T \mathbf{B}^{-1}(x - x_b) + \frac{1}{2}(\mathbf{M}x - \chi_o)^T \mathbf{R}^{-1}(\mathbf{M}x - \chi_o). \quad (2)$$

Diese bestraft einerseits Abweichungen zwischen der beobachteten Konzentration, χ_o , und der simulierten Konzentration, $\mathbf{M}x$, und andererseits Abweichungen zwischen einem a-priori Zustand, x_b , und dem optimierten, a-posteriori Zustand, x . \mathbf{M} stellt in dieser Gleichung den Modelloperator dar, der aus den Emissionen die simulierte Konzentrationszeitserie liefert und in unserem Fall den mit FLEXPART-

COSMO gewonnen Quellsensitivitäten und einer linearen Interpolation für die Basislinie entspricht. Die Kovarianzmatrizen \mathbf{B} und \mathbf{R} , die die Unsicherheit des a-priori bzw. die Modell/Beobachtungsunsicherheit beschreiben, spielen beim Gewinnen des a-posteriori Zustands eine zentrale Rolle. In Henne et al. (2016) wurde eine semi-objektive Methode beschrieben, um verschiedene Parameter zu bestimmen, die die Struktur der Kovarianzmatrizen bestimmen. Dazu gehört die relative Unsicherheit der totalen Schweizer Methanemissionen, σ_E . Diese wurde entsprechend der Vorgängerstudie auf 16 % (1- σ Niveau) gesetzt und ist somit grösser als die im NIR gegebenen 9 % (FOEN, 2017). Eine räumliche Korrelationslänge, L , die die Kovarianz zwischen verschiedenen Emissionsgitterzellen beschreibt, wurde wie in der vorangegangenen Studie auf 50 km gesetzt. Für die Unsicherheit der a-priori Basislinie wurde die aus der Hintergrundbestimmung für die Station Jungfrauoch gewonnene Unsicherheit von $\sigma_B = 12.5$ ppbv verwendet. Eine zeitliche Korrelationslänge, τ_B , für die Kovarianz der Basislinie wurde ebenfalls wie in der vorangegangenen Studie auf 14 Tage gesetzt. Die Beobachtungs/Modellunsicherheit setzt sich aus den Unsicherheiten der Messung und der des Modells zusammen. Die Beobachtungsunsicherheit wurde aus den Vergleichen der kalibrierten Messungen gegen unabhängige Referenzgase gewonnen und war für alle Stationen und Zeiten kleiner als die Modellunsicherheit. Diese wiederum wurde aus einem Vergleich der a-priori Simulationen mit den Beobachtungen gewonnen und als ein absoluter Anteil, σ_{\min} , und ein Anteil relativ zur simulierten a-priori Konzentration beschrieben, σ_{srr} . Beide Anteile wurden separat für jede an der Inversion beteiligte Messstation bestimmt. Weiterhin wurde eine zeitliche Korrelationslänge für den Beobachtungs/Modellfehler, τ_o , für die Stationen im Schweizer Mittelland auf einen Wert von 0.25 Tagen und für die Bergstationen auf einen Wert von 0.5 Tagen gesetzt. In der vorangegangenen Studie wurde $\tau_o = 0.5$ Tage für alle Stationen verwendet, aber es hat sich gezeigt, dass die hier gewählten Werte besser mit der empirischen Autokorrelationsfunktion der a-priori Residuen übereinstimmen.

2.4.2 Sensitivitätsinversionen

In der vorangegangenen Studie wurde eine grosse Anzahl von Sensitivitätsinversionen durchgeführt, um die strukturelle Unsicherheit des Inversionssystems besser zu charakterisieren. Die strukturelle Unsicherheit beschreibt dabei die Variabilität in den a-posteriori Resultaten, die aufgrund der Wahl verschiedener Parameter oder methodischer Ansätze auftritt. Sie unterscheidet sich von der analytischen Unsicherheit der a-posteriori Werte, die direkt aus der Bayesischen Inversion bei einem fest gewählten Satz von Parametern ermittelt wird. Bei der hier durchgeführten inversen Emissionsbestimmung für den erweiterten Zeitraum 2013 bis 2016 musste die Anzahl der Sensitivitätsinversionen auf ein überschaubares Mass reduziert werden. Die gewählten Sensitivitätsinversionen sollen hier kurz erläutert werden.

In der bisherigen Studie trug insbesondere die Wahl der Starthöhe für die FLEXPART-COSMO Simulationen einen grossen Teil zur strukturellen Unsicherheit der Inversion bei. Auch in dieser Studie wurden Inversionen jeweils für zwei verschiedene Starthöhen pro Station durchgeführt (C7I und C7h, Tabelle 2). Weiterhin wurde untersucht, inwieweit der absolute Wert der a-priori Emissionen eine Rolle spielt. Dies wurde notwendig, da in der vorangegangenen Studie ein a-priori basierend auf Hiller et al. (2014) von ~ 180 Gg yr⁻¹ für die Schweiz verwendet wurde, was dem UNFCCC Bericht aus dem Jahr 2014 entsprach, dieser Wert in der Zwischenzeit aber auf ~ 206 Gg yr⁻¹ (UpPrior, Tabelle 2) geändert wurde (FOEN, 2017). Ausserhalb der Schweiz wurden das Europäischen TNO/MACC Inventar (Kuenen et al., 2014) als a-priori verwendet. Ausserdem wurde getestet, welchen Einfluss die zeitliche Variabilität der Emissionen auf das a-posteriori Resultat haben könnte. Daher wurden Inversionen einerseits mit zeitlich konstanten und andererseits mit saisonal variablen (seas, Tabelle 2) Emissionen durchgeführt. Während letztere offensichtlich in der Lage sein sollten, tatsächliche Schwankungen in den Emissionen zeitlich besser abzubilden, besteht durch die stark vergrösserte Anzahl zu optimierender Variablen die Gefahr, dass das System durch die vorhandenen Messungen zu wenig gut bestimmt werden kann und sich weniger zuverlässige Anpassungen in den a-posteriori Emissionen ergeben.

Insgesamt wurden für die Jahre 2013 bis 2016 jeweils 8 Sensitivitätsinversionen durchgeführt (Tabelle 2, Abschnitt 5.1). Für das Jahr 2013 kommt eine Analyse des Hintergrundeinflusses hinzu, die auf der Verwendung von globalen Hintergrundfeldern basiert (Abschnitt 5.2). Der Einfluss von zusätzli-

chen Methanbeobachtungen in der Nordostschweiz auf die Emissionsbestimmung wird für das Jahr 2016 untersucht (Abschnitt 5.3).

Tabelle 2: Für die Jahre 2013 bis 2016 durchgeführte Sensitivitätsinversionen.

Kürzel	Emissionen	a-priori	Starthöhen
C7I	Jahresmittel	180 Gg yr ⁻¹	tief
C7I_seas	Saisonal	180 Gg yr ⁻¹	tief
C7I_UpPrior	Jahresmittel	206 Gg yr ⁻¹	tief
C7I_UpPrior_seas	Saisonal	206 Gg yr ⁻¹	tief
C7h	Jahresmittel	180 Gg yr ⁻¹	hoch
C7h_seas	Saisonal	180 Gg yr ⁻¹	hoch
C7h_UpPrior	Jahresmittel	206 Gg yr ⁻¹	hoch
C7h_UpPrior_seas	Saisonal	206 Gg yr ⁻¹	hoch

2.4.3 Verwendung von Hintergrundzeitserien aus globalen Modellen

Wie oben beschrieben werden Luftmassen in den hier verwendeten FLEXPART-COSMO Simulationen 96 Stunden ausgehend von den Messstandorten rückwärts in der Zeit verfolgt. Die letzte Position jedes Modellpartikels, das diesen Luftmassentransport darstellt, wird dabei gespeichert. Falls ein Modellpartikel das beschränkte Modellgebiet vor Ablauf der 96 Stunden verlässt, werden die letzte Partikelposition und der Zeitpunkt des Verlassens gespeichert. Aus diesen Informationen kann unter Verwendung einer grösserskaligen Konzentrationsverteilung (z.B. von einem globalen Modell) die Basiskonzentration für die FLEXPART-COSMO Simulation entsprechend Gleichung (1) berechnet werden. Dazu muss aus der dreidimensionalen Konzentrationsverteilung auf die einzelnen Positionen der Modellpartikel interpoliert werden. Zusätzlich muss der zeitliche Verlauf der Konzentrationsverteilung berücksichtigt werden, so dass eine Interpolation in vier Dimensionen notwendig wird. Für die hier präsentierten Methan Simulationen wurden Basiskonzentrationen aus drei verschiedenen globalen Methansimulationen gewonnen. Diese Simulationen haben gemeinsam, dass sie bereits andere Methanbeobachtungen „assimiliert“ haben und daher ein optimiertes Methankonzentrationsfeld liefern, das nicht allein von a-priori Emissionen abhängig ist und keinen grösseren globalen Bias beinhalten sollte.

Das erste verwendete Modell ist das TM5-Modell betrieben vom JRC Ispra (Bergamaschi et al., 2013). Dieses Modell wird mit einer 4DVAR Datenassimilation betrieben und optimiert räumlich aufgelöst die Methanflüsse in die Atmosphäre. Dazu werden verschiedene Methan-Beobachtungsdatensätze verwendet. Einerseits wurde hier ein TM5 Lauf ausgewertet, der ausschliesslich GOSAT Satelliten-Beobachtungen der Methansäule in der Datenassimilation verwendet (TM5 GOSAT). Andererseits wurde ein TM5 Lauf analysiert, der lediglich die bodengebundenen Beobachtungen des NOAA Flaschen-Netzwerks assimiliert (TM5 NOAA). Für beide TM5 Simulationen standen Konzentrationsfelder mit einer horizontalen Auflösung von 6° x 4° auf 25 vertikalen Levels und einer zeitlichen Auflösung von einem Tag für das Jahr 2013 zur Verfügung. Die relativ geringe Modellauflösung lässt sich durch den relativ hohen Rechenaufwand der verwendeten Assimilationsmethode begründen.

Ausserdem wurde innerhalb dieses Projekts ein an der Empa entwickeltes und auf FLEXPART basierendes Modellsystem (FLEXPART-CTM) erweitert, das es erlaubt, ohne grossen rechnerischen Aufwand globale Methankonzentrationsfelder zu gewinnen (Henne et al., 2013). Dieses System simuliert den Transport, den Abbau durch OH und und Cl-Radikale und Emissionen von CH₄, indem 3 Millionen Modellpartikel kontinuierlich in der globalen Atmosphäre transportiert werden. Emissionen werden dabei nicht als neue Modellpartikel ins System entlassen, sondern vorhandene Partikel nehmen diese Emissionen auf, wenn sich das Partikel in der atmosphärischen Grenzschicht befindet. Innerhalb dieser Studie wurde das System um ein „Nudging“-Modul erweitert, welches das simulierte Konzentrationsfeld direkt an beobachtete Methankonzentrationen anpasst. Dazu wurden die bodennahen Methanbeobachtungen für das Jahr 2013 aus dem GAW Datenzentrum für Treibhausgase (WDCGG) verwendet. Sowohl kontinuierliche als auch Flaschen Messungen wurden berücksichtigt. Im Gegensatz zum TM5 Ansatz liefert das Nudging kein optimiertes Methanemissionsfeld, sondern ein angepasstes Konzentra-

tionsfeld. Dies hat den Vorteil, dass die Modellrechnung relativ schnell ist, aber den Nachteil, dass ein Fehler in den Emissionen nicht dauerhaft korrigiert wird. Stattdessen wird lediglich die Auswirkung auf das Konzentrationsfeld korrigiert. FLEXPART-CTM Konzentrationsfelder wurden mit einer zeitlichen Auflösung von einem Tag und einer horizontalen Auflösung von $2^\circ \times 2^\circ$ auf 24 vertikalen Levels für das Jahr 2013 gespeichert.

In Abbildung 8 und Abbildung 9 ist ein Beispiel für die Interpolation der globalen Modelldaten auf die Partikelendpunkte dargestellt. Zu sehen sind die Positionen der Partikel nach 4 Tagen Rückwärts-transport im COSMO7 Modellgebiet auf zwei verschiedenen Modellhöhen. Es ist zu erkennen, dass eine grosse Anzahl Partikel das Modellgebiet an dessen nord-westlicher Ecke bereits verlassen haben, während sich eine Restwolke von Partikeln noch westlich von Irland im Modellgebiet aufhält. Im Fall der TM5 Modelldaten (Abbildung 8) sind die Methankonzentrationen an den Partikel-Endpunkten relativ gering und aufgrund der geringen horizontalen Modellauflösung sind nur relativ moderate Konzentrationsgradienten zu erkennen. Im FLEXPART-CTM (Abbildung 9) sind die Methankonzentrationen in diesem Beispiel wesentlich höher als in TM5. Ausserdem ist die Variabilität an den Partikelendpunkten deutlich grösser, da die höhere Modellauflösung auch schärfere Methangradienten zulässt. Gerade in Osteuropa unterscheiden sich die beiden globalen Modelle in diesem Beispiel massiv.

Die aus der Interpolation für die Standorte Beromünster und Jungfraujoch gewonnenen Basislinien sind in Abbildung 10 und Abbildung 11 dargestellt. Während ein Grossteil der grossräumigen Variabilität in allen 3 Modellprodukten ähnlich ausfällt, lassen sich auch ausgeprägte Unterschiede insbesondere zwischen FLEXPART-CTM und den beiden TM5 Läufen erkennen. FLEXPART-CTM Konzentrationen waren, wie sich schon im Beispiel angedeutet hat, insbesondere während starken Verschmutzungsevents (Februar 2013), aber auch durchgehend in den Sommermonaten höher als TM5 Konzentrationen. Diese Differenzen waren grösser für den Standort Beromünster (bis zu 80 ppbv!) als für Jungfraujoch und manifestierten sich als mittlerer Bias von 13 ppbv bzw. 4 ppbv zwischen FLEXPART-CTM und TM5-GOSAT. TM5-NOAA Konzentrationen wichen nur leicht von TM5-GOSAT Konzentrationen ab, wobei TM5-NOAA sowohl für Beromünster als auch Jungfraujoch stets tiefer lag als TM5-GOSAT. Der RMSE (Wurzel des mittleren quadratischen Fehlers; **R**oot **M**ean **S**quare **E**rror) zwischen den aus verschiedenen Modellen gewonnenen Basislinien kann als Abschätzung der Unsicherheit der gewonnenen Basislinie betrachtet werden. Der RMSE zwischen FLEXPART-CTM und TM5-GOSAT betrug 10.1, 10.3, 10 und 8 ppbv für die Standorte Beromünster, Lägern-Hochwacht, Schauinsland und Jungfraujoch. Diese Unsicherheit ist nur wenig kleiner als die aus der REBS Methode (Henne et al., 2016; Ruckstuhl et al., 2012) gewonnene Unsicherheit für den statistischen Hintergrund am Jungfraujoch. Abschliessend muss noch festgestellt werden, dass die aus den Modelldaten gewonnenen Basislinien für Jungfraujoch wesentlich stärkere Variabilität aufweisen als die aus der REBS Methode gewonnene (vergleiche Abbildung 2). Dies ist ein Hinweis darauf, dass die REBS Basislinie wahrscheinlich aufgrund des begrenzten Modellgebiets für die Verwendung als Modellbasislinie zu glatt ist und die bisher durchgeführte Optimierung der Basislinie als Teil des Zustandsvektors in der Inversion notwendig ist. Ein Vergleich zwischen a-posteriori REBS Basislinie und modellbasierter wird in Abschnitt 5.2 diskutiert.

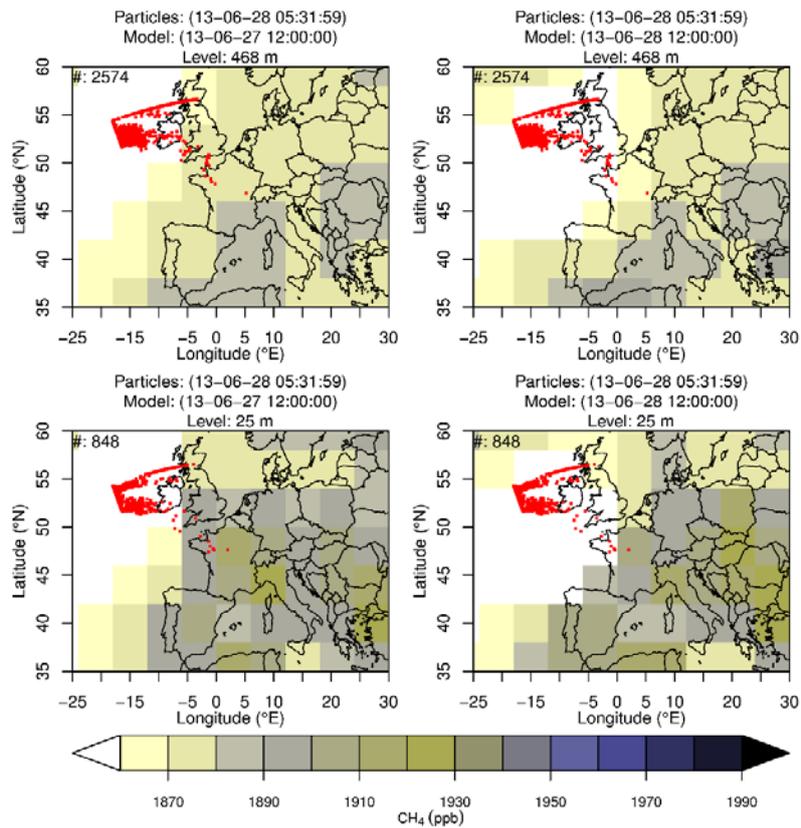


Abbildung 8: Illustration der auf Partikelendpunkte durchgeführte Interpolation von grossskaligen Modelldaten (TM5-NOAA). Die roten Punkte geben die Position von Modellpartikeln zum Ende der FLEXPART-COSMO Simulation an. Die 4 verschiedenen Modellfelder geben die zeitliche Abfolge (links, rechts) und verschiedene Vertikallevel (oben, unten) an.

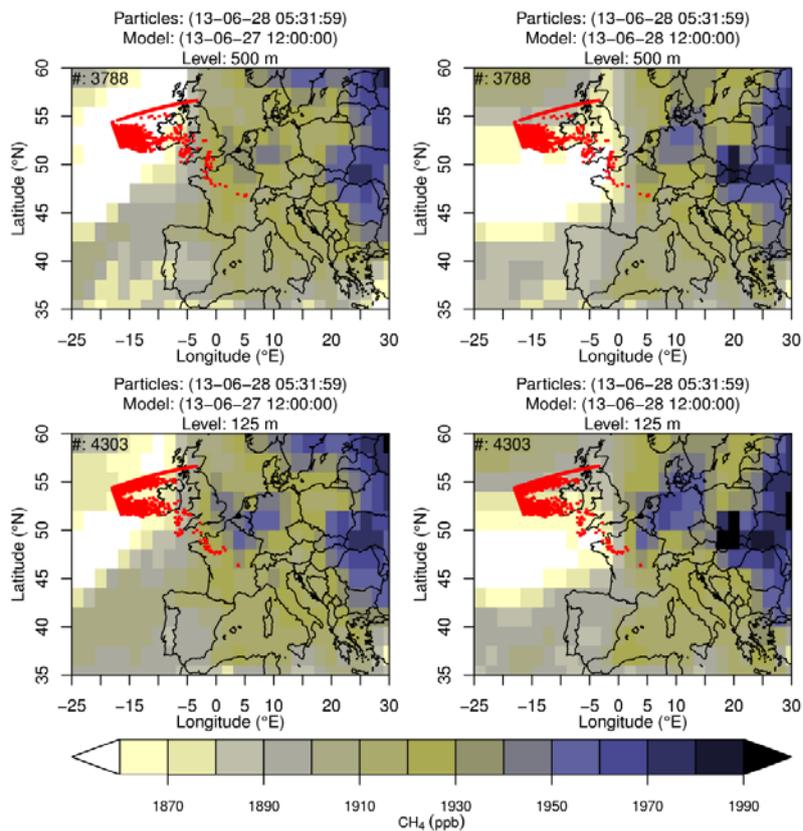


Abbildung 9: Wie Abbildung 8, aber für FLEXPART-CTM.

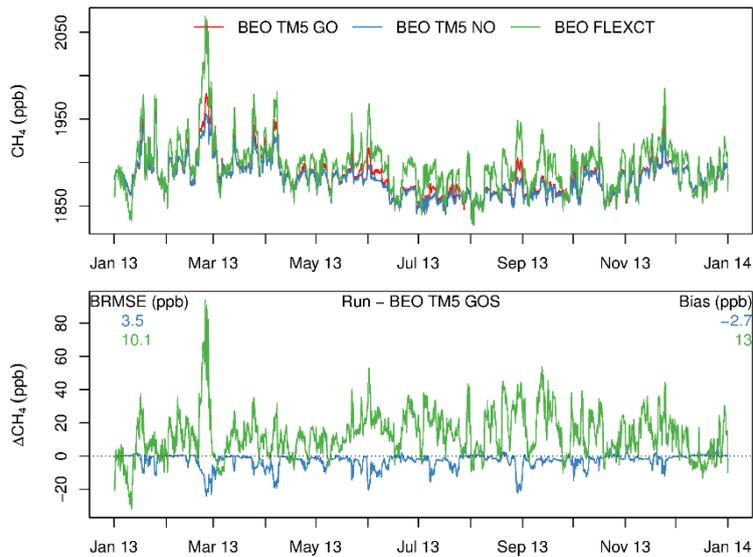


Abbildung 10: (oben) Zeitserie der für die Station Beromünster aus verschiedenen Modellen (Farbe) gewonnenen Basislinie. (unten) Differenz in der Basislinie gegenüber aus TM5-GOSAT Basislinie.

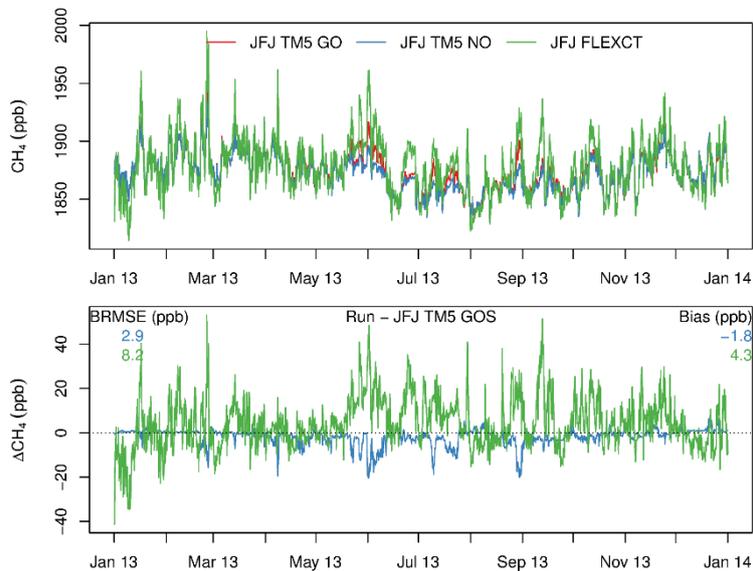


Abbildung 11: Wie Abbildung 10 aber für den Standort Jungfraujoch.

3 Explorative Datenanalyse Gäbris

Die Treibhausgasmessungen am Sendeturm Gäbris wurden vom 10. Mai bis 14. November 2016 durchgeführt. Während dieser Zeit kam es lediglich zu einer längeren Unterbrechung der Messungen im Oktober, welche auf den Ausfall der internen Pumpe im Messgerät zurückzuführen war (Abbildung 12). Auch bei den meteorologischen Messungen kam es aufgrund von Umbauarbeiten an der Kommunikationsinfrastruktur des Sendeturms zu einem Ausfall der Aufzeichnung im September. Ausserhalb dieser Unterbrüche wurde eine nahezu lückenlose Messabdeckung erreicht (Tabelle 3), die in insgesamt ca. 4000 gültigen Methanstundenmitteln resultierte.

Zu Beginn der Messungen im Mai befand sich die lokale Vegetation am Gäbris in einer frühen Entwicklungsphase und die umliegenden Weiden wurden noch nicht von grasenden Kühen genutzt. Dies änderte sich für die Monate Juni bis Mitte September, während derer die umliegenden Wiesen teils beweidet, teils für die Heuproduktion genutzt wurden. Ein früher Kälteeinbruch Ende September beendete die lokale Beweidung für das Jahr. Die gemessenen Methankonzentrationen lagen im Bereich von 1860 ppbv bis zu einem Spitzenwert von 2240 ppbv (Abbildung 12). Mittlere Monatskonzentrationen

waren am niedrigsten im Juli und am höchsten im September. Aus dem Verlauf der Windrichtung kann sofort erkannt werden, dass das Sommerhalbjahr 2016 stark von westlichen Winden dominiert war (Abbildung 12). Es finden sich wenige ausgedehnte Episoden mit anderen Windrichtungen.

Während der Sommermonate konnte keine signifikante Korrelation zwischen den gemessenen Methan- und Kohlenstoffdioxidkonzentrationen festgestellt werden. Dies ist typisch für Stationen die weder von anthropogenen noch biogenen CO_2 Flüssen dominiert werden, sondern deren CO_2 Signal aus einer Mischung beider Flüsse bestimmt wird. Im Sommer, wenn eine Netto- CO_2 -Aufnahme der Vegetation erwartet werden kann, würde man bei rein biogenen CO_2 Flüssen aufgrund der atmosphärischen Mischungsdynamik eher eine negative Korrelation zwischen beiden Gasen erwarten. In den Herbstmonaten waren CH_4 und CO_2 dagegen leicht positiv korreliert, was der Erwartung einer verminderten biogenen Aufnahme von CO_2 und daher einem dominanteren anthropogenen Signal für beide Gase entspricht. Da es nicht ohne grösseren Zusatzaufwand möglich war, andere anthropogene Spurengase wie Kohlenstoffmonoxid parallel am Gäbris zu messen, kann an dieser Stelle allein aus einer Korrelationsanalyse kein Rückschluss auf die Methanquellen in der Ostschweiz gezogen werden.

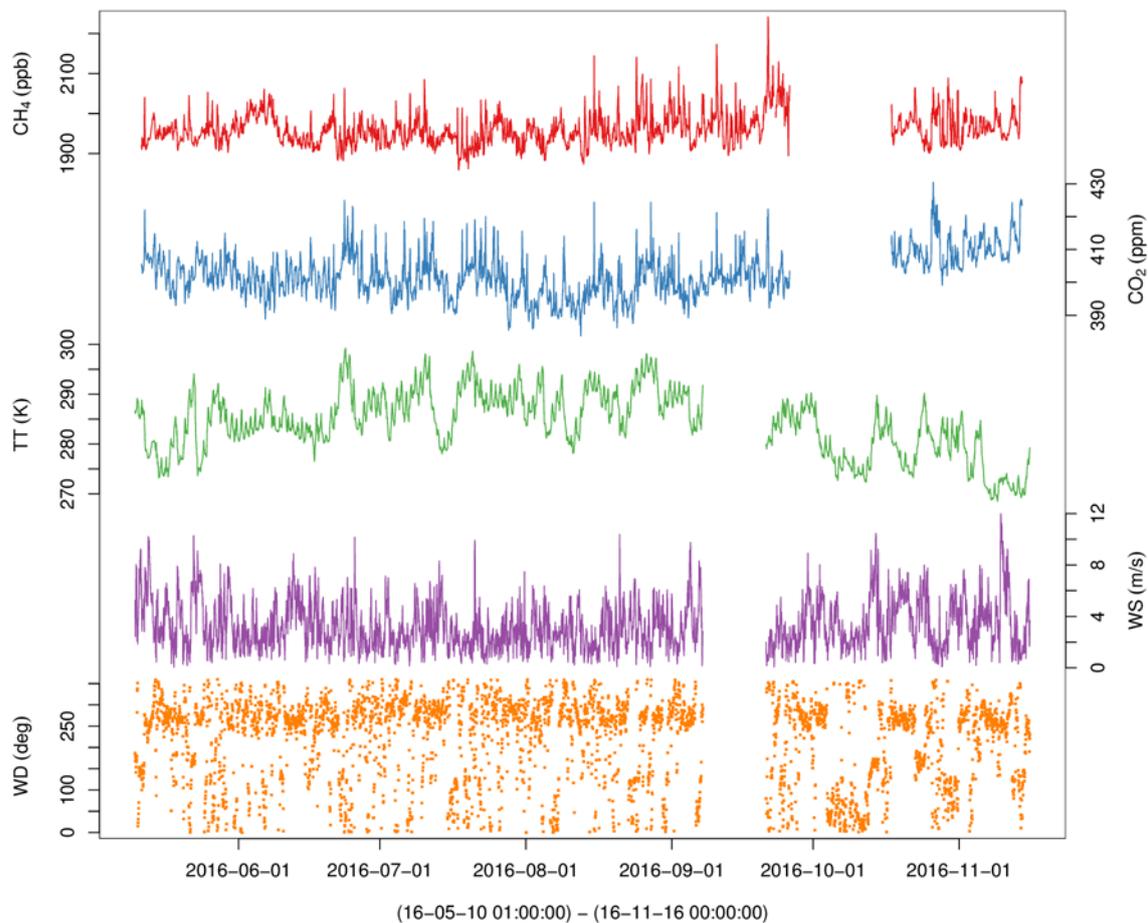


Abbildung 12: Zeitserien aller am Gäbris verfügbaren Messungen während der durchgeführten Messkampagne (Stundenmittel): Methan (CH_4), Kohlenstoffdioxid (CO_2), Temperatur (TT), Windgeschwindigkeit (WS), Windrichtung (WD).

Tabelle 3: Datenverfügbarkeit an der Station Gäbris separat für alle Monate der Messkampagne.

Monat	Verfügbarkeit Methan (%)	Verfügbarkeit Meteo (%)	Bemerkungen
Mai	66 %	70 %	Start der Messung 10.05.2016
Juni	100 %	100 %	
Juli	100 %	100 %	
August	100 %	100 %	
September	82 %	55 %	Umbauten, Pumpenausfall
Oktober	46 %	100 %	Pumpenausfall
November	44 %	50 %	Ende der Messung: 14.11.2016

3.1 Tagesgänge

Im Folgenden soll mit Hilfe von mittleren Tagesgängen der Konzentrations- und Meteomessungen der Messstandort Gäbris charakterisiert werden und es sollen Rückschlüsse für die anschliessende Transportmodellierung gewonnen werden. Die mittleren Tagesgänge des gemessenen CH₄, der Temperatur und der Windgeschwindigkeit können als typisch für eine erhöht gelegene Bergstation betrachtet werden. Methankonzentrationen waren nachts bzw. in den frühen Morgenstunden am geringsten und stiegen bis zur Mittagszeit schnell an (fast 30 ppbv im Mittel), um anschliessend wieder kontinuierlich abzusinken. Dies entspricht dem typischerweise während der Tagesstunden gesteigerten Einfluss von verschmutzter Grenzschichtluft, der durch verstärkte vertikale Mischung und durch gerichteten vertikalen Transport in thermischen Windsystemen entsteht. Die Temperaturen stiegen ebenfalls gegen Morgen schnell an, erreichten ihr Maximum allerdings erst einige Stunden nach dem Konzentrationsmaximum. Dazu im Gegensatz waren Windgeschwindigkeiten nachts am grössten, wenn die Strömung auf Höhe der Bergstation stärker von derjenigen in Bodennähe entkoppelt ist. Tagsüber mit verstärkter vertikaler Mischung und Konvektion reduzierten sich die Windgeschwindigkeiten deutlich. Der Tagesgang von CO₂ ist aufgrund der komplexeren Quellen/Senkenabhängigkeit schwieriger zu interpretieren. Grundsätzlich kann man aber davon ausgehen, dass sich nachts die CO₂ Konzentrationen einem Wert annäherten, der eher dem in der freien Troposphäre entspricht. Im Sommer sind die CO₂ Konzentrationen in der freien Troposphäre meist höher als derjenigen in der von biosphärischer CO₂-Aufnahme dominierten atmosphärischen Grenzschicht. Tagsüber reduzierten sich die CO₂ Konzentrationen deutlich. Dies kann einerseits durch direkte CO₂ Aufnahme der lokalen Vegetation und andererseits auf den gesteigerten Einfluss von CO₂-ärmerer Grenzschichtluft erklärt werden. Zwischen den einzelnen Monaten gab es deutliche Abweichungen in den Tagesgängen der Spurengase. Die grössten mittleren Methanamplituden wurden im August und September erreicht, wenn Mittagswerte im Mittel 50 ppbv höher lagen als nächtliche Werte. Im Gegensatz dazu verschwand dieser Anstieg im November fast vollständig. Aus dieser Beobachtung allein lässt sich allerdings nicht schliessen, dass die lokalen/regionalen Methanflüsse im Spätsommer grösser waren als im Frühsommer oder Spätherbst. Die Amplitude des Tagesgangs kann nur als Kombination von lokalen Transportsystemen und Emissionen verstanden werden. Dieser Transport von Grenzschichtluft kann aus den hier gewonnen Messungen nicht quantifiziert werden, aber es kann angenommen werden, dass lokale Transportsysteme im Spätsommer aufgrund generell häufiger vorherrschenden Flachdrucklagen eine grössere Rolle gespielt haben.

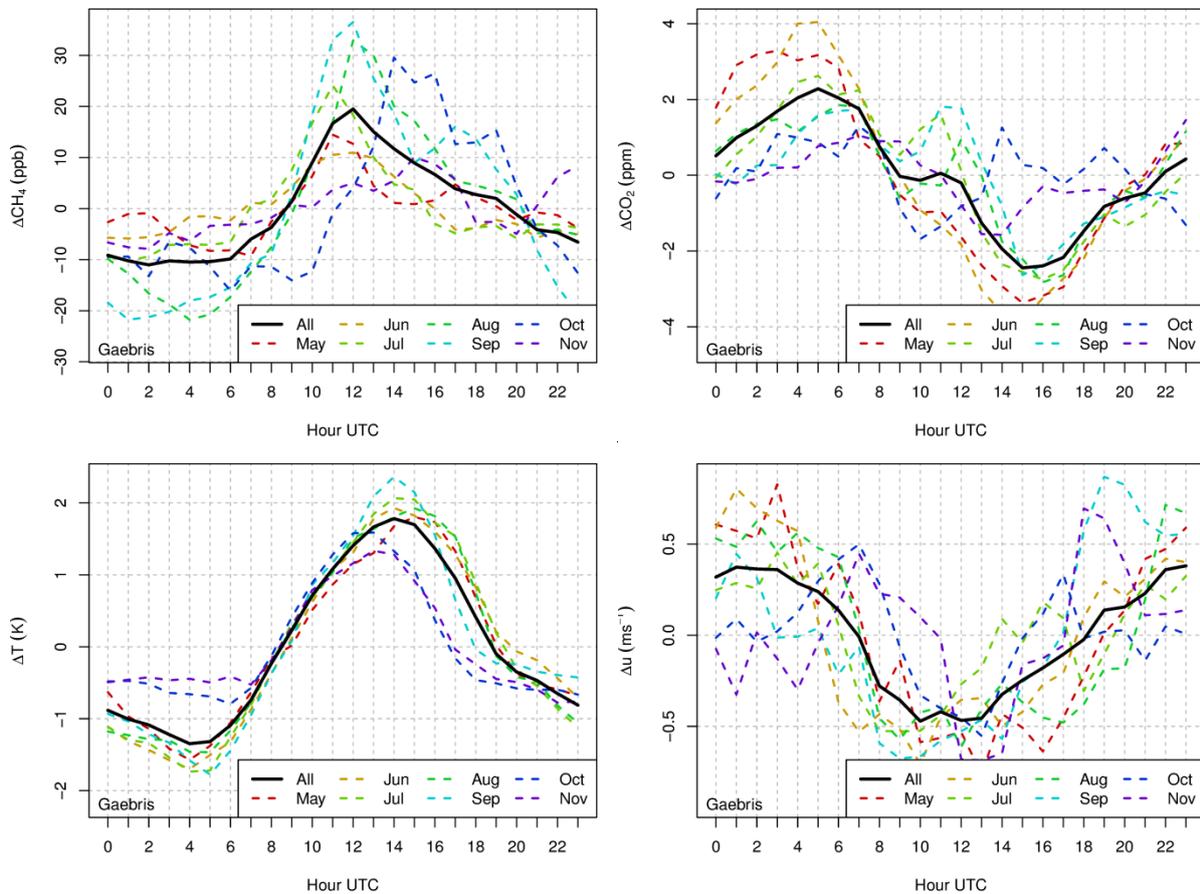


Abbildung 13: Mittlere Tagesgänge von (oben links) Methan, (oben rechts) Kohlenstoffdioxid, (unten links) Temperatur und (unten rechts) Windgeschwindigkeit am Gäbris für die Monate Mai bis November 2016. Die mittleren Tageswerte aller gezeigten Größen wurden vor der Berechnung der Tagesgänge entfernt.

3.2 Lokales Windsystem und Methankonzentrationen

Wie bereits erwähnt, wurden die Messungen am Gäbris während des Sommerhalbjahrs lokal durch Westwinde dominiert. Dies wird umso deutlicher, wenn man die Windrose für die Dauer der Messung betrachtet (Abbildung 14). Zu mehr als 50 % herrschten Winde mit westlicher Richtung und mit Windgeschwindigkeiten bis zu 12 m s^{-1} vor. Dabei ist eine leichte Drehung von West auf West-Nord-West für kleinere Windgeschwindigkeiten zu beobachten. Betrachtet man die Windrosen für die Tages- und Nachtstunden separat, so fällt auf, dass tagsüber häufiger Situationen mit geringeren Windgeschwindigkeiten aus nordwestlichen bis nördlichen Richtungen auftraten, während nachts die Dominanz westlicher und teilweise südöstlicher Windrichtungen stark hervortrat. Die nördliche Anströmung mit relativ schwachen Windgeschwindigkeiten am Tag ist ein Hinweis auf sich zu dieser Tageszeit ausbildender thermischer Zirkulationssysteme, die in einem Hangaufwind oder auch einer generellen Advektion Richtung Gebirge resultieren. Dies wird auch durch die Beobachtung gestützt, dass sich diese nordwestlichen bis nördlichen Winde stärker während der Sommer- als während der Herbstmonate ausbildeten (Abbildung 14).

Die mittlere (median) Abweichung der Methanstundenmittel vom Tagesmittel, aufgetragen gegen die Windrichtung zeigt, dass höhere Methanwerte im Mittel über die ganze Messperiode mit nördlichen Anströmungsrichtungen verbunden waren (Abbildung 14). Dieses mittlere Bild wurde hauptsächlich von den während des Tages gemessenen Methanwerten bestimmt, während die Abweichungen nach Windrichtung nachts generell kleiner waren und eine weniger starke Richtungsabhängigkeit aufwiesen (Ausnahme Südwestsektor mit geringen Methanwerten). Analysiert man die mittleren Methanerhöhungen während der Tagesstunden für die beiden Jahreszeiten, lässt sich die maximale Amplitude in den Sommermonaten für nordöstliche Richtungen erkennen, während in den Herbstmonaten die stärkste (und ausgeprägtere) Amplitude direkt in nördlicher Richtung lag. In den Sommer-

monaten ist ein zusätzlicher Methananstieg aus südöstlichen Richtungen zu erkennen, der allerdings selten auftrat und wahrscheinlich lokaleren Quellen in der Umgebung Gais zugeordnet werden kann. Die nordöstliche Anströmungsrichtung entspricht eher einem Transport aus der Region St. Margrethen und Bregenz, während die nördliche Anströmung der Region Rorschach entsprechen würde. Bei der direkten Zuordnung einer Quellregion anhand dieser Analyse ist allerdings Vorsicht geboten. Erstens stellt die Windmessung nur eine Punktmessung auf der Spitze des Gäbris dar und kann nicht als repräsentativ für die ganze Region gesehen werden. Zweitens kommt die hohe Amplitude im CH₄, wie für die mittleren Tagesgängen beschrieben, eher durch einen grossräumigeren Transport von Grenzschichtluft zustande, in der verschiedene Methanquellen/regionen vermischten einen Anstieg der Konzentration verursachen, als durch einen direkten Transport von einer einzigen Methanquelle/region. Nicht ganz auszuschliessen ist, dass Quellen in der Region Stadt St. Gallen (also aus nordwestlicher Richtung) eine Rolle spielen, da diese Windrichtung häufiger und auch bei höheren Windgeschwindigkeiten (stärkere Verdünnung) auftrat.

Nachts waren die mittleren Methanamplituden nach Windrichtung grundsätzlich kleiner als am Tag. In den Sommermonaten fällt ein Anstieg bei nordwestlicher Anströmung (Richtung Stadt St. Gallen auf), der allerdings in den Herbstmonaten von einem starken Anstieg bei nördlicher Anströmung überdeckt wird. Weiterhin ist konsistent ein nächtlicher Anstieg bei südöstlicher Anströmung zu beiden Jahreszeiten sichtbar. Dieser könnte einer Quellregion im Rheintal zuzuordnen sein, allerdings ist es unwahrscheinlich, dass nachts ein dazu notwendiger Vertikaltransport stattfindet. Daher erscheint eine grossräumigere Quelle oder Hintergrundvariabilität wahrscheinlicher.

Weder für den Gesamtdatensatz noch für die Tages- oder Nachtmessungen wurden die Richtungen, in denen die beiden nahegelegenen ländlichen Betriebe gelegen sind (80° und 245°, siehe Abbildung 5), als Richtungen mit erhöhtem CH₄ ausgemacht. Dies bestätigt, dass die erhöhte Messung auf dem Sendeturm und die zusätzlich durchgeführte Datenfilterung ausreichen, um die potentielle Dominanz dieser lokalen Quellen auszuschliessen.

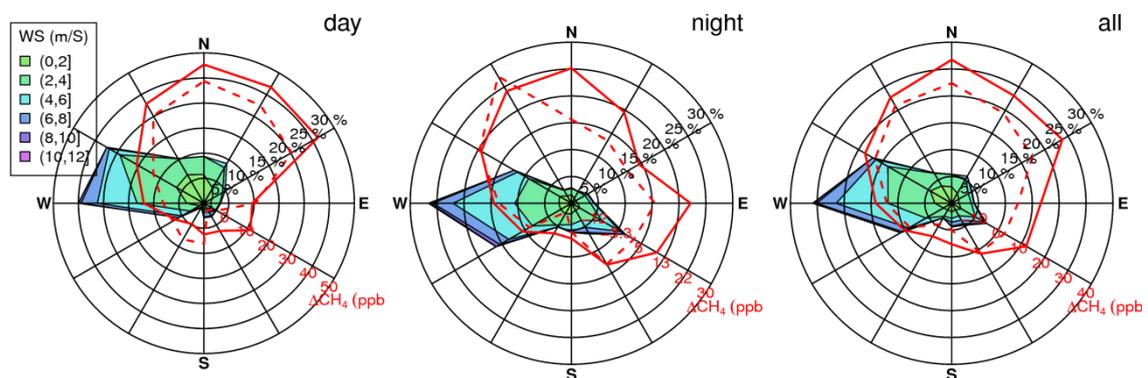


Abbildung 14: Windrosen (blau-grüne Schattierung) und Mittel (rote Linie) und Median (rote gestrichelte Linie) der Methanerhöhung gegenüber dem Tagesmittel für verschiedene Windrichtungen für Messstation Gäbris zwischen Mai und November 2016: (links, Tag) nur Werte zwischen 09:00 und 16:00 UTC, (mitte, Nacht) nur Werte zwischen 21:00 und 04:00 UTC und (rechts, Alle) alle Messungen.

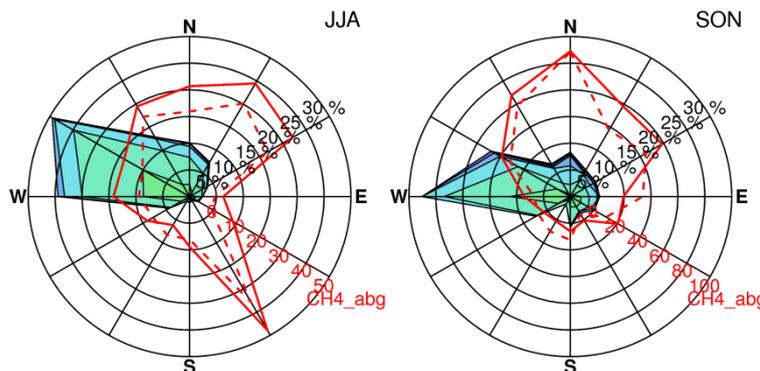


Abbildung 15: Wie Abbildung 14 aber nur für Werte zwischen 09:00 und 16:00 UTC aufgespalten nach Jahreszeit: (links) Sommermonate, (rechts) Herbstmonate.

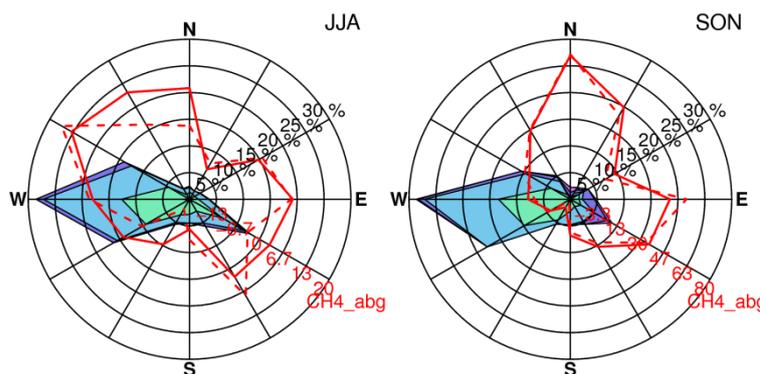


Abbildung 16: Wie Abbildung 14 aber nur für die nächtlichen Werte zwischen 21:00 und 04:00 UTC aufgespalten nach Jahreszeit: (links) Sommermonate, (rechts) Herbstmonate.

3.3 Vergleich mit anderen Methanmessungen

Vergleicht man die am Gäbris gemessenen Methankonzentrationen mit denen der am nächsten gelegenen CarboCount-CH Station (Lägern-Hochwacht; Abbildung 17), lässt sich auf den ersten Blick eine gute Übereinstimmung der Variabilität und des mittleren Niveaus erkennen, obwohl die Standorte horizontal 80 km und vertikal 400 m voneinander entfernt liegen. Die Regressionsanalyse zeigt allerdings, dass die Zeitserien nicht exakt übereinstimmen. Die Korrelation zwischen beiden liegt lediglich bei $r=0.4$ und die mittlere Abweichung (Bias korrigierter RMSE) war mit 50 ppbv eher gross. Im Mittel waren die Konzentrationen an der tiefer gelegenen Station Lägern-Hochwacht um 16 ppbv höher als an der Station Gäbris. Interessant ist das verschobene Maximum in der Kreuzkorrelation bei einem Versatz von 4 Stunden, welches andeutet, dass Spitzenkonzentrationen an Lägern-Hochwacht 4 Stunden früher auftreten als am Gäbris. Dies ist wahrscheinlich auf Unterschiede im mittleren Tagesgang der beiden Stationen zurückzuführen. An Lägern-Hochwacht wird die höchste Konzentration im Mittel bereits zwischen 08:00 und 09:00 UTC beobachtet, während dies erst gegen 12:00 UTC am Gäbris der Fall war. Zusätzlich könnte die grossräumige Advektion von „Methanfronten“ aus vorwiegend westlicher Richtung eine Rolle spielen, die dazu führen sollte, dass grossräumige Änderungen an Lägern-Hochwacht früher beobachtet werden als am Gäbris.

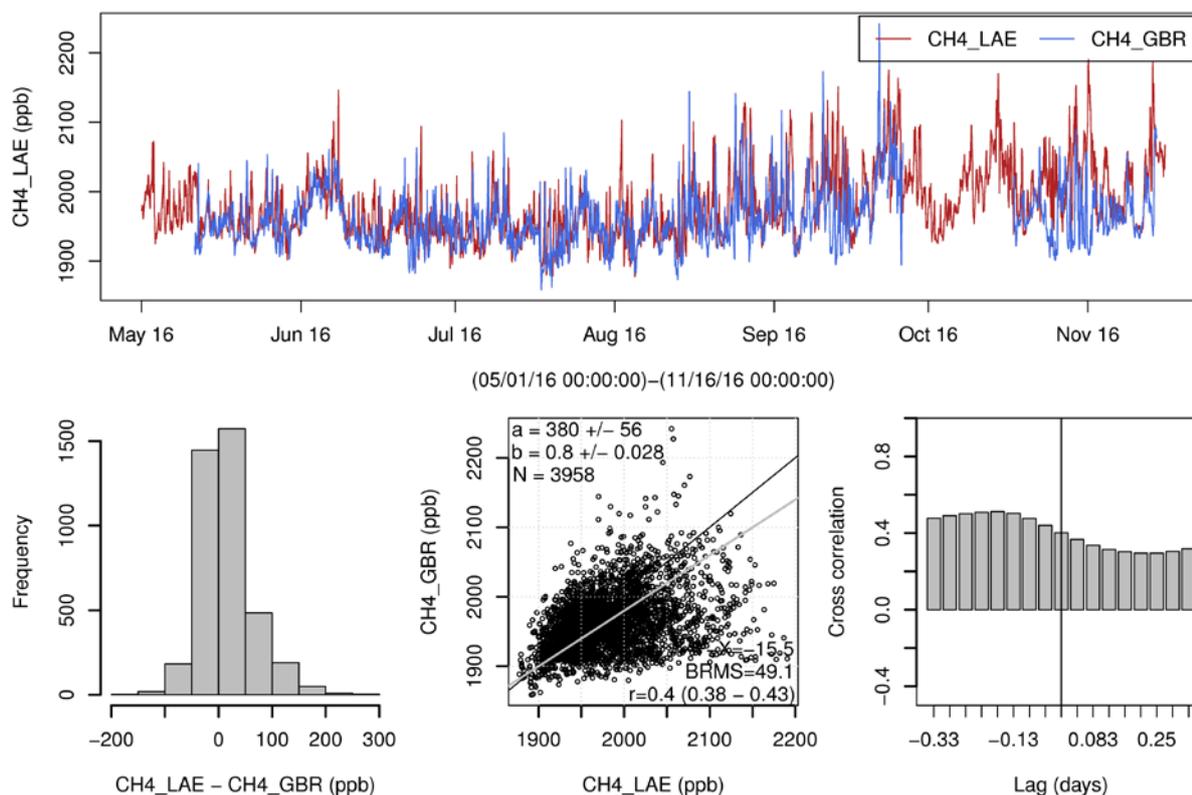


Abbildung 17: Beobachtete Methanzeitserien an den Stationen Gäbris und Lägern (Distanz 80 km; Stundenmittel): (oben) Zeitserie, (unten links) Histogramm der Differenzen, (unten Mitte) lineare Regression zwischen beiden Zeitserien, (unten rechts) Kreuzkorrelationsfunktion.

4 Weiterentwicklung des FLEXPART-COSMO Transport Modells

In der vorhergehenden Projektphase waren bereits FLEXPART-COSMO Simulation durchgeführt worden, die Eingabedaten mit einer höheren horizontalen Auflösung (COSMO2: 2 km x 2 km) verwendeten. Diese Simulationen zeigten im Vergleich zu COSMO7 und auch FLEXPART-ECMWF Simulationen eine zu starke Verdünnung/Mischung des Transports, was zu unrealistischen Konzentrationssimulationen führte (ca. Faktor 2 zu klein). Da COSMO2 ein konvektionsauflösendes Modell ist, aber im operationellen Betrieb der MeteoSchweiz lediglich Modellfelder stündlich als momentane Werte gespeichert werden, war eine Vermutung, dass die hohe zeitliche und räumliche Variabilität in den COSMO2 Windfeldern zu einer künstlich gesteigerten Verdünnung während des Transports in FLEXPART-COSMO führen kann. Dies könnte einerseits durch die nicht zwingend massenbilanzierten momentanen Windfelder und andererseits durch die zeitliche Interpolation von kurzzeitigen Windböen in diesen Feldern verursacht werden. Für eine weitere Version des FLEXPART Modells, die hochaufgelöste Eingabedaten des regionalen Wettermodells WRF verwendet, konnte gezeigt werden, dass zeitlich gemittelte Eingabefelder die Modellqualität verbessern (Brioude et al., 2012). Diesem Problem sollte im Rahmen dieser Studie weiter nachgegangen und aufgezeigt werden, ob die Verwendung stunden-gemittelter COSMO2 Felder dieses Problem beheben könnte.

4.1 Validierungs-Werkzeug für FLEXPART Simulationen

Um das korrekte Verhalten eines Ausbreitungsmodells wie FLEXPART zu testen, wären Ausbreitungsexperimente auf der hier untersuchten zeitlich/räumlichen Skala wünschenswert. Bei diesen würde an einem bekannten Ort eine bekannte Menge eines Spurengases freigesetzt und dessen Konzentration an zahlreichen Punkten im Abwind der Quelle gemessen und im weiteren Verlauf mit Modellsimulationen verglichen. Da ein solches Experiment zur Validierung von FLEXPART-COSMO nicht zur Verfügung stand, wurde hier ein anderer Ansatz gewählt, durch den die interne Konsistenz des Modells überprüft

werden kann. Lagrange Partikeldispersionsmodelle wie FLEXPART-COSMO können sowohl vorwärts als auch rückwärts in der Zeit betrieben werden. Im Vorwärtsmodus kann direkt ein durch eine Quelle verursachtes Konzentrationsfeld ermittelt werden, während die im Rückwärtsmodus gewonnenen Quellsensitivitäten noch mit der Quellstärke multipliziert und über das Transportgebiet aufsummiert werden müssen (siehe Gleichung (1)). Eine Anforderung, die ein solches Transportmodell erfüllen muss, ist, dass die simulierten „Vorwärts- und Rückwärtskonzentrationen“ übereinstimmen, solange die gleichen Quellstärken in beiden Simulationen verwendet werden (Seibert and Frank, 2004). Ist dies nicht der Fall, deutet dies auf Inkonsistenzen im Transport hin, wie sie zum Beispiel durch nicht massenbilanzierte Windfelder hervorgerufen werden können.

Um diese Transportkonsistenz zu testen, wurde im Rahmen dieses Projekts ein Validierungswerkzeug erstellt, das erlaubt, für ein beliebiges Cluster von Rezeptoren und einer einzelnen Quelle FLEXPART Vorwärts- und Rückwärtsläufe durchzuführen und deren Resultate schnell zu analysieren. Das grundsätzliche Konzept für diese Simulationen ist in Abbildung 18 dargestellt. Neun Rezeptorpunkte mit jeweils einer horizontalen Ausdehnung von $0.25^\circ \times 0.25^\circ$ wurden über das zentrale Schweizer Mittelland verteilt (graue Kästchen). Anschliessend wurden für diese Rezeptorpunkte FLEXPART Rückwärtsrechnungen von jeweils 8 3-Stunden Freisetzungen durchgeführt und diese für 24 Stunden im Modell zurückverfolgt. Daraus ergeben sich $9 \times 8 = 72$ Konzentrationssimulationen an den Rezeptoren. Aus den mittleren, totalen Quellsensitivitäten aller Freisetzungen wurde dann die Gitterzelle mit der maximalen Sensitivität und einer Entfernung von mindestens 200 km zu den Rezeptoren als Quell-Gitterzelle ausgewählt. Die Quellsensitivitäten dieser Zelle wurden dann mit einer konstanten Emissionsrate multipliziert, um die Konzentrationen an den Rezeptoren zu erhalten. Analog wurde von der Quell-Gitterzelle startend eine FLEXPART Vorwärtsrechnung mit identischer Emissionsstärke durchgeführt und die resultierende Konzentration an den Rezeptoren ausgewertet.

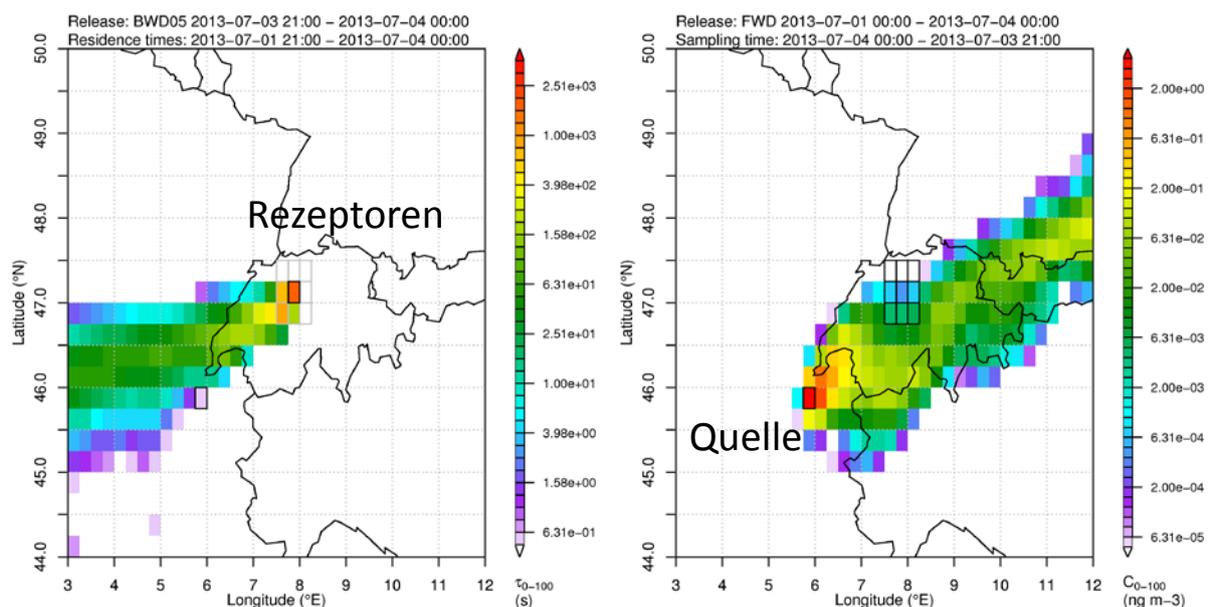


Abbildung 18: (links) Quellsensitivität/Aufenthaltszeit eines FLEXPART Rückwärtslaufs gestartet im Schweizer Mittelland, (rechts) Konzentrationsfeld eines FLEXPART Vorwärtslaufs und einer Quelle südlich von Genf.

Für die weiteren Tests wurde die Periode 01. bis 04. Juni 2013 ausgewählt, die sich durch eine relativ stabile südwestliche Anströmung durch das Schweizer Mittelland auszeichnete. Das Experiment entspricht damit einer für die Schweiz sehr typischen Windsituation und ist charakteristisch für die Simulationen wie sie z.B. für die Messstation Beromünster durchgeführt wurden.

Insgesamt wurden fünf verschiedene meteorologische Datensätze verwendet, um die FLEXPART Simulationen anzutreiben:

- ECMWF: IFS Analysen ($0.2^\circ \times 0.2^\circ$) zusammen mit der ECMWF Version von FLEXPART
- COSMO7: Analysen der MeteoSchweiz mit Ausgabe der momentanen Windgeschwindigkeiten (Standardprodukt für alle bisherigen FLEXPART-COSMO Simulationen)

- COSMO2: Analysen der MeteoSchweiz mit Ausgabe der momentanen Windgeschwindigkeiten
- COSMO2_free: Selbst durchgeführter freier COSMO Lauf ohne Datenassimilation aber mit gleichen Modelleinstellungen wie für die COSMO2 Analyse und Ausgabe der momentanen Windgeschwindigkeiten
- COSMO2_avg: Wie COSMO2_free aber mit Ausgabe von stundengemittelten Windfeldern

Abbildung 19 zeigt die mit der Standardversion von FLEXPART und mit ECMWF Antrieb simulierten Konzentrationen für die Vorwärts- und Rückwärtskonfiguration. Insgesamt stimmen die beiden Simulationen sehr gut überein (hohe Korrelation, Steigung von 1). Für einige wenige Konzentrationspaare ist die Übereinstimmung zwar nicht perfekt, aber es ergibt sich immer noch ein sehr geringer Bias-korrigierter RMSE (BRMS) von 0.019 ng kg^{-1} (bei einer mittleren simulierten Konzentration von 0.1 ng kg^{-1}). Das hier erhaltene Ergebnis ist gut vergleichbar mit früheren mit FLEXPART-ECMWF gewonnenen Resultaten (Seibert and Frank, 2004) und bestätigt die Konsistenz der Transportbeschreibung in der Standard Version von FLEXPART.

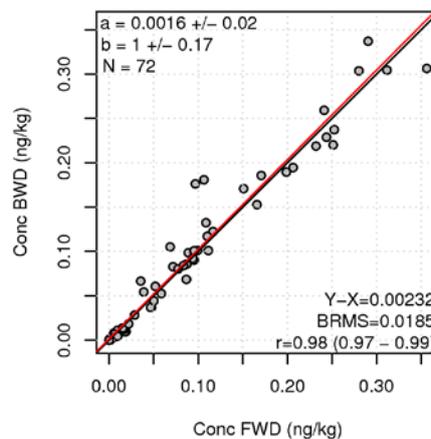


Abbildung 19: Vergleich der mit FLEXPART-ECMWF simulierten Konzentrationen in der Vorwärts (FWD) und Rückwärtskonfiguration (BWD).

4.2 Testsimulationen mit FLEXPART-COSMO unter Verwendung verschiedener Eingabefelder

Als nächstes wurde ein identischer Test (gleicher Zeitraum, gleiche Quelle und Rezeptoren) für FLEXPART-COSMO mit COSMO7 und COSMO2 Analysefeldern durchgeführt. Während für COSMO7 die Übereinstimmung (rein optisch) zwischen Vorwärts- und Rückwärtslauf noch relativ gut ausfällt, manifestiert sich bei COSMO2 eine klare Abweichung mit grundsätzlich niedrigeren Konzentrationen für die Rückwärtssimulationen (Abbildung 20). Neben diesem systematischen Unterschied zwischen den Simulationsrichtungen sind im Fall von COSMO2 auch deutlich geringere Konzentrationen für dieselben Emissionsstärken simuliert worden, während die COSMO7 Konzentrationen sehr vergleichbar mit denen des FLEXPART-ECMWF Laufs waren. Dies deckt sich mit unserer bisherigen Beobachtungen für Simulationen mit FLEXPART-COSMO.

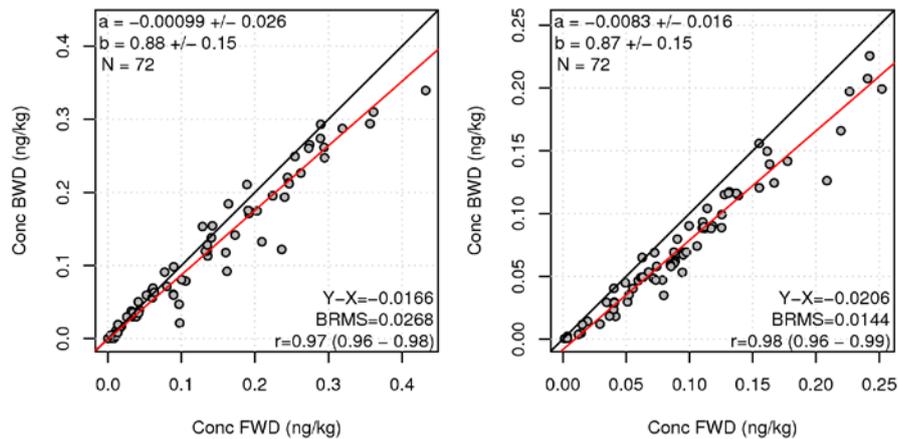


Abbildung 20: Wie Abbildung 19 allerdings für FLEXPART-COSMO mit (links) COSMO7 und (rechts) COSMO2 Eingabefeldern.

Da in den operationell von der MeteoSchweiz erzeugten COSMO Analysefeldern keine mittleren Grössen gespeichert werden und diese auch nicht einfach ins operationelle System integriert werden konnten, wurden gezielt zusätzliche COSMO Simulationen auf dem COSMO2 Modellgebiet für die genannte Periode durchgeführt. Für diese wurden dieselben Modelleinstellungen wie im operationellen System der MeteoSchweiz verwendet, allerdings konnte keine zusätzliche Datenassimilation durchgeführt werden. Sowohl stundengemittelte als auch momentane Windfelder dieser COSMO Simulation wurden für die weitere Verwendung mit FLEXPART gespeichert.

Abbildung 22 illustriert für einen Beispielzeitpunkt die Differenzen zwischen den verschiedenen COSMO Windfeldern und der in FLEXPART berechneten Grenzschichthöhe. Grundsätzlich ähneln sich die horizontalen Windvektoren in allen Produkten und hier dargestellten Modellschichten. Die hier gezeigten Vertikalwinde sind diejenigen relativ zur Topographie, so wie sie in FLEXPART-COSMO für den Partikeltransport verwendet werden. Daher sind diese Geschwindigkeiten in Bodennähe sehr gering (die Strömung muss der Topographie folgen), während in der Höhe (wo die Strömung eher horizontal verläuft und weniger von der Topographie abgelenkt wird) teilweise sehr grosse, relative Vertikalwinde auftreten. Da die Topographie in der COSMO2 Auflösung wesentlich detaillierter ist und grössere Steigungen aufweist, sind die im Vergleich zu COSMO7 viel grösseren relativen Vertikalwindgeschwindigkeiten verständlich. Zwischen den verschiedenen COSMO2 Produkten ist keine systematische Abweichung bei den Vertikalwinden auszumachen. Insgesamt ähneln sich die momentanen und mittleren Felder des freien COSMO2 Laufs mehr als im Vergleich zur COSMO2 Analyse. Auffällig ist allerdings noch, dass die aus der COSMO2 Analyse berechneten Grenzschichthöhen in diesem Beispiel deutlich höher sind als die aus der COSMO7 Analyse und dem freien COSMO2 Lauf gewonnenen.

Verwendet man die COSMO2 Felder (momentane und mittlere) aus der freien Simulation, um FLEXPART-COSMO anzutreiben, und führt die gleiche Analyse von Vorwärts- und Rückwärtläufen durch, ändern sich die Ergebnisse im Vergleich zu den COSMO2 Analysefeldern nur wenig (Abbildung 21). Sowohl mit momentanen als auch mit mittleren Windfeldern besteht eine Inkonsistenz zwischen Vorwärts- und Rückwärtssimulation. Diese manifestiert sich in diesem Fall als genereller Bias von -0.02 ng kg^{-1} in den Rückwärtläufen, was in der gleichen Grössenordnung liegt wie bei den Simulationen mit COSMO2 Analysefeldern. Zudem bleiben die Konzentrationen unverändert tief, wenn mittlere Windfelder verwendet werden, sodass die starke absolute Differenz zu den COSMO7 Simulationen weiterbesteht.

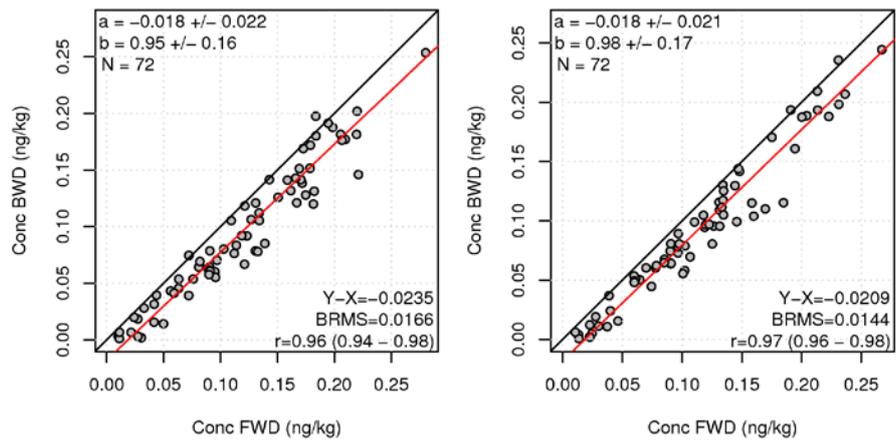


Abbildung 21: Wie Abbildung 19 allerdings für FLEXPART-COSMO mit (links) Antrieb von COSMO2_free und (rechts) COSMO2_avg.

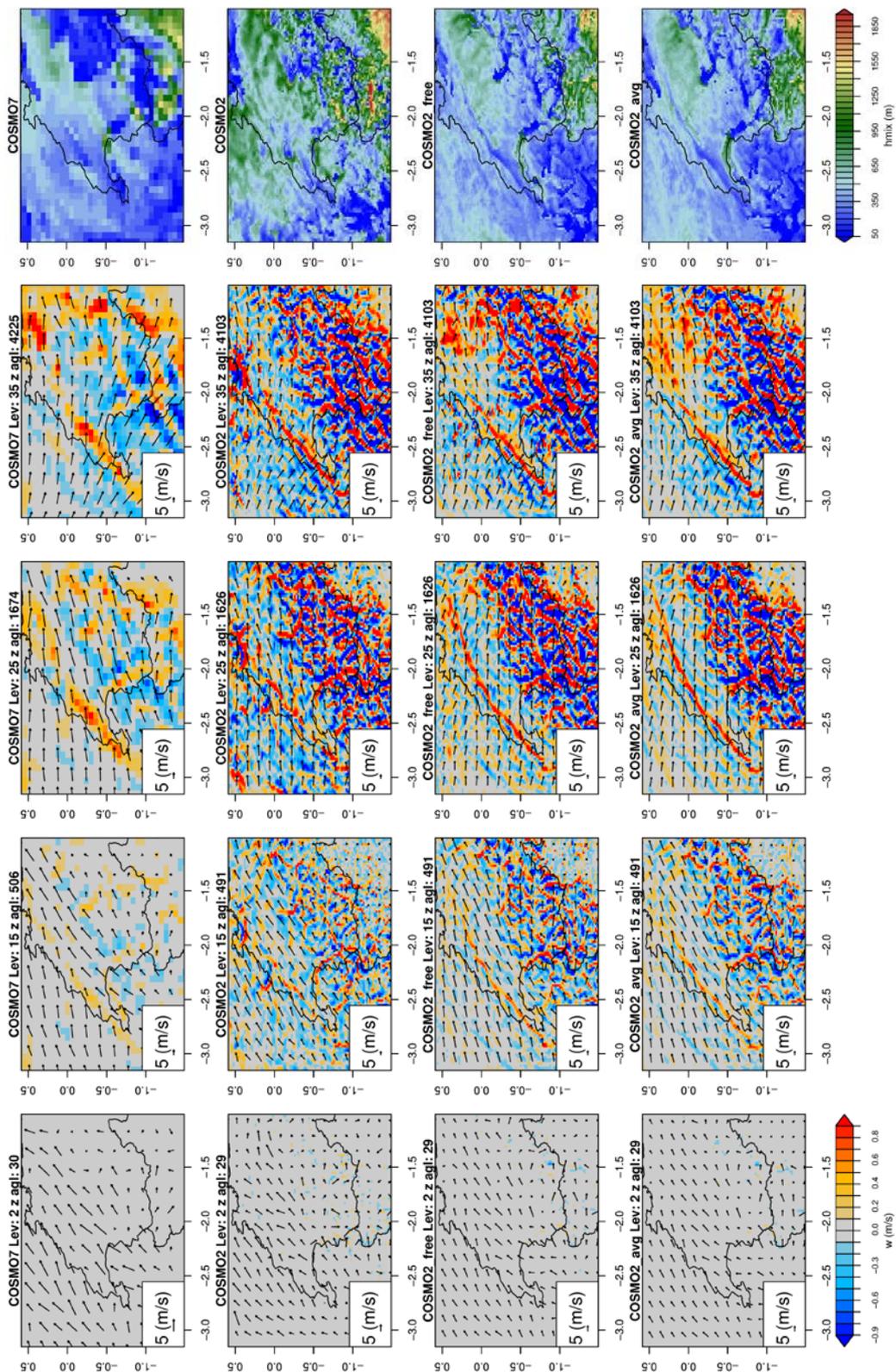


Abbildung 22: Visualisierung von COSMO Windfelder (Pfeile: horizontal; Farbe: vertikal) und in FLEXPART berechneten Grenzschichthöhen (oben) für 2013-07-03 15:00 UTC. Der dargestellte Vertikalwind ist derjenige relativ zur Topographie, so wie er in FLEXPART-COSMO für den mittleren Vertikaltransport verwendet wird. Die Längen der Windvektoren variiert in den einzelnen Feldern, um die bestmögliche Darstellung zu erreichen. Die Reihenfolge der Modellprodukte ist (links nach rechts): COSMO7 Analyse, COSMO2 Analyse, COSMO2 freier Lauf, COSMO2 freier Lauf mittlere Felder. Folgende Modelllevel/höhen (unten nach oben) werden dargestellt: Level 2, 30 m über Grund; Level 15, 500 m über Grund; Level 25 1600 m über Grund und Level 35, 4100 m über Grund.

4.3 Änderungen in der Transportbeschreibung

Nachdem das Verwenden der mittleren Windfelder keine offensichtliche Verbesserung der FLEXPART-COSMO2 Simulationsergebnisse ergeben hat, wurde der FLEXPART-COSMO Modellcode einer umgehenden Kontrolle unterzogen. Dabei traten zwei mögliche Ungenauigkeiten bei der Transportbeschreibung zutage, die beim Transport im komplexen Gelände bzw. bei höherer horizontaler Modellauflösung verstärkt Probleme verursachen könnten.

1. Standardmässig wird die absolute (bzgl. Meereshöhe) vertikale Windgeschwindigkeit von COSMO gespeichert. In FLEXPART wird allerdings die relative vertikale Windgeschwindigkeit bzgl. der Modelltopographie benötigt. Um diese zu gewinnen, muss aus den horizontalen Windkomponenten und den Höhengradienten der Modellschichten eine Korrektur berechnet werden. In FLEXPART-COSMO wird dies für die Position jedes einzelnen Modellpartikels realisiert, indem die Höhengradienten und horizontalen Windgeschwindigkeiten auf die Position des Partikels interpoliert werden und anschliessend die relative Vertikalgeschwindigkeit berechnet wird. Es wurde festgestellt, dass dieses Vorgehen nicht komplett im Einklang mit der Berechnung im COSMO Modell ist, in welchem Höhengradienten immer als zentrale Differenzen (über 3 Gitterzellen) berechnet werden. Die Berechnung in FLEXPART-COSMO wurde entsprechend modifiziert.
2. Weiterhin wurde eine Inkonsistenz im Transportcode festgestellt, die in steiler Topographie zu Fehlern führen kann. Bisher wird aus der mittleren relativen Vertikalwindgeschwindigkeit und den turbulenten Vertikalwinden eine neue Partikelposition über Grund berechnet. Diese wird dann verwendet um die vertikale Position als Index in Bezug auf das COSMO Gitter zu berechnen, wozu die Höhe der Topographie an der Position des Modellpartikels benötigt wird. Allerdings wird an dieser Stelle vernachlässigt, dass sich das Partikel im selben Zeitraum auch horizontal bewegt hat, und daher die Höhe der Topographie an der neuen Position eine andere sein könnte. Dadurch könnte es zu leichten Ungenauigkeiten in der Berechnung der vertikalen Partikelposition kommen. Diese Inkonsistenz konnte entfernt werden, indem ein Update der Topographie an der neuen Partikelposition vor die Berechnung des vertikalen Index gezogen wurde.

Beide Änderungen im Code wurden mit drei verschiedenen Eingabedaten (COSMO7 Analyse, COSMO2 Analyse und mittlere COSMO2 Felder) getestet. Wird lediglich die geänderte Berechnung des relativen Vertikalwindes (Punkt 1) angewandt, erreicht man im Fall von COSMO7 eine deutlich bessere, fast perfekte Übereinstimmung zwischen Vorwärts- und Rückwärtssimulationen (Abbildung 23), während für COSMO2 Simulationen (Analyse und mittlere Felder) weiterhin eine klare Differenz mit kleineren Konzentrationen für Rückwärtsläufe besteht. An den grundsätzlich geringeren Konzentrationen der COSMO2 Simulationen ändert die Anpassung weiterhin sehr wenig. Im Fall von COSMO7 taucht zwar ein einziger Fall mit deutlich höheren Konzentrationen auf (0.5 ng kg^{-1}), für alle anderen Fälle ändert sich allerdings wenig.

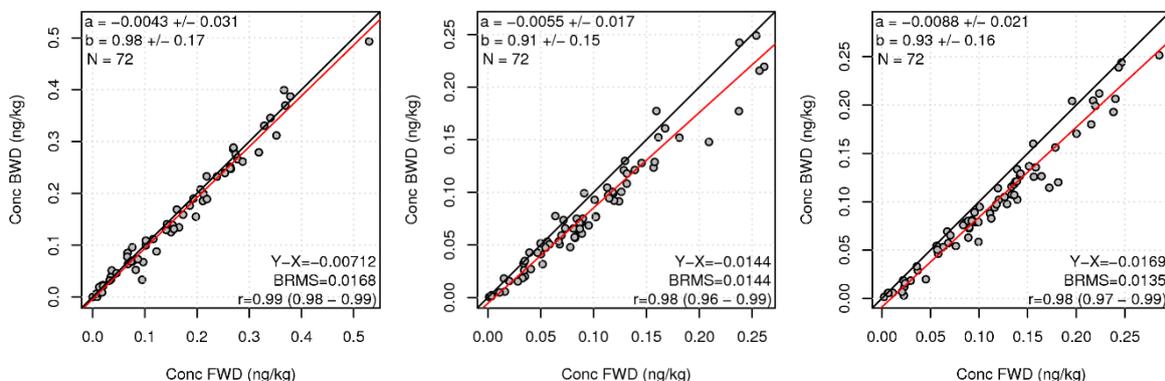


Abbildung 23: Wie Abbildung 19 allerdings für FLEXPART-COSMO mit geänderter Berechnung des relativen Vertikalwindes und (links) Antrieb von COSMO7 Analysen, (Mitte) COSMO2 Analysen und (rechts) COSMO2_avg.

Werden sowohl die geänderte Berechnung des relativen Vertikalwindes als auch das geänderte Update der lokalen Topographie berücksichtigt (Punkte 1 und 2), verbessert sich die Konsistenz der Vorwärts- und Rückwärtssimulationen für alle verwendeten Eingabedatensätze (Abbildung 24). Für COSMO7 Analysen erhält man nun eine fast perfekte Übereinstimmung zwischen beiden Transportrichtungen, welche der mit FLEXPART ECMWF erreichten mindestens ebenbürtig ist. Aber auch mit den beiden COSMO2 Eingabedatensätzen wurden gute Übereinstimmungen mit geringem Bias und kleinen BRMS erreicht, allerdings bestehen weiterhin dieselben Unterschiede zwischen COSMO7 und COSMO2 in Punkto absoluter Konzentration. An der zu starken Durchmischung bei Verwendung von COSMO2 Feldern hat sich somit nichts geändert, aber die interne Konsistenz des Modells konnte wesentlich verbessert werden.

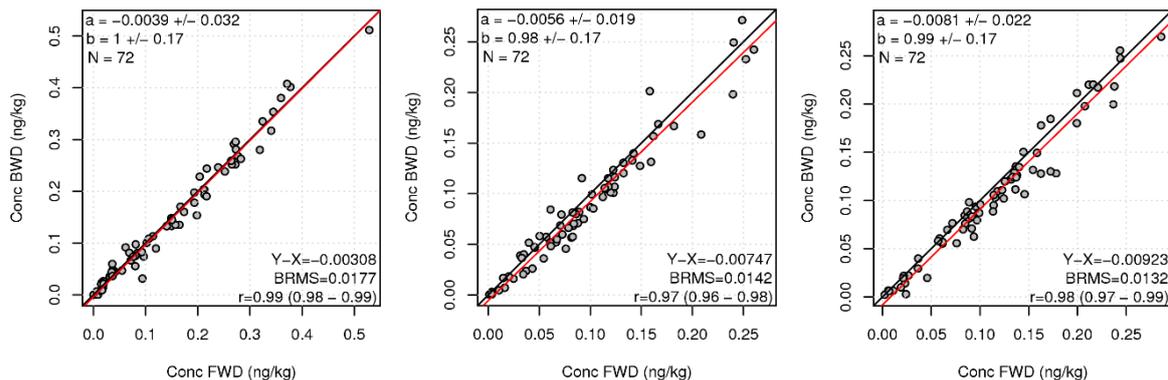


Abbildung 24: Wie Abbildung 19 allerdings für FLEXPART-COSMO mit geänderter Berechnung des relativen Vertikalwindes und geändertem Update der lokalen Topographie für (links) Antrieb von COSMO7 Analysen, (Mitte) COSMO2 Analysen und (rechts) COSMO2_avg.

4.4 FLEXPART-COSMO Simulationen für den Standort Gäbris

Im Folgenden wurde untersucht, ob die oben beschriebenen Änderungen in FLEXPART-COSMO zu einer Verbesserung der Methansimulationen an den Messstandorten führen. Für eine erste Analyse wurden dazu die während der Messkampagne am Gäbris gewonnenen Daten ausgewählt. Dieser Standort muss aufgrund seiner erhöhten Lage in sehr komplexem Gelände als besonders anspruchsvoll angesehen werden. Daher sollte die Verwendung einer erhöhten Modellauflösung zu verbesserten Simulationsergebnissen führen.

Zwei Serien von FLEXPART-COSMO Simulationen wurden durchgeführt:

1. Mit COSMO7 Antrieb und der bisherigen Transportbeschreibung, wie für alle anderen Stationen angewandt.
2. Mit COSMO1 Antrieb und den oben beschriebenen Modifikationen.

Während die erste Version für den gesamten Beobachtungszeitraum von Mai bis November 2016 angewandt wurde, wurden mit der zweiten Konfiguration lediglich die Monate Juli und August 2016 simuliert. Dabei wurden in der COSMO7 Version vier verschiedene Partikelstarthöhen verwendet, um der grossen Differenz zwischen wirklicher Stationshöhe und Modelltopographie Rechnung zu tragen (siehe auch Tabelle 1). Mit COSMO1 wurden lediglich drei Starthöhen gerechnet, von denen hier nur diejenige in 90 m über Modellgrund (Mitte zwischen Modelltopographie und tatsächlicher Höhe) diskutiert wird. Gezeigt werden im Folgenden die direkt simulierten regionalen Methanbeiträge, wie sie sich unter Verwendung der auch für die Inversion genutzten a-priori Emissionen (MAIOLICA+TNO/MACC) ergeben. Verglichen werden diese mit den am Gäbris gemessenen Konzentrationen, von denen die Basislinie, wie sie mit der REBS Methode für Jungfraujoch bestimmt wurde, entfernt wurde. Die Simulation entspricht damit der in der Inversion durchgeführten a-priori Simulation.

Der Vergleich der COSMO7 Simulation (Starthöhe 300 m über Grund) mit den Beobachtungen (Abbildung 25) zeigt eine mässige Übereinstimmung. Zwar werden insbesondere in den Monaten Mai, Juni, Oktober und November die meisten gemessenen Schwankungen in ihrer Amplitude recht gut wiedergegeben, aber in den übrigen Monaten wird die gemessene Variabilität vom Modell deutlich

unterschätzt. Dies resultiert insgesamt in einem mässigen Korrelationskoeffizienten von $r=0.42$ und einer Steigung zwischen Simulation und Beobachtung von 0.65. Der simulierte Tagesgang kann den gemessenen nur unzureichend wiedergeben und verpasst den Grossteil des gemessenen Konzentrationsanstiegs zwischen den frühen Morgenstunden und der Mittagszeit. Dies dürfte auch die insgesamt schlechte Modellleistung in den Sommermonaten erklären. Mit der „groben“ Modellauflösung des COSMO7 Modells wird die Topographie des Gäbris nicht korrekt abgebildet (Abbildung 4), sodass die sich in Realität ausbildenden, thermischen Zirkulationssysteme vom Modell nicht oder nicht ausreichend reproduziert werden. Somit findet im Modell auch kein gerichteter Transport von methanreicher Grenzschichtluft zur Spitze des Gäbris statt. Thermische Windsysteme sind besonders ausgeprägt in sommerlichen Flachdrucklagen, also genau in der Phase, in der FLEXPART mit COSMO7 Antriebsprobleme hat, die Konzentrationen während des Tages zu reproduzieren. Die nächtlichen Messungen werden vom Modell besser wiedergegeben (leicht verbesserter Korrelationskoeffizient und vor allem verbesserte normalisierte Standardabweichung, Abbildung 27 links). In Abbildung 27 sind weiterhin die Modellleistungen für andere Starthöhen im FLEXPART-COSMO7 Modell (C-7) dargestellt. Wie erwartet ist eine Tendenz zu kleineren Korrelationskoeffizienten und höherer simulierter Variabilität für niedrigere Starthöhen zu erkennen. Die beste Modellleistung wurde für die beiden oberen Starthöhen (300 m über Grund und echte Stationshöhe über Meer) und nächtliche Daten erreicht. Allerdings sind diese Verbesserungen gegenüber anderen Starthöhen und Tageszeiten nur gering.

Betrachtet man separat die Modellleistung nur für die Monate Juli und August, so muss eine deutlich schlechtere Übereinstimmung mit den Beobachtungen festgestellt werden. Für alle Starthöhen und Tageszeiten (auch nächtliche Werte) verschlechtern sich die Vergleichsstatistiken (Abbildung 27, rechts). Die Gründe für diese schlechte Modellleistung wurden bereits im vorigen Abschnitt diskutiert. Neben der fehlenden Fähigkeit des COSMO7 Modells, die thermischen Windsysteme am Gäbris zu reproduzieren, wäre es natürlich auch möglich, dass die Methanemissionen in der näheren Umgebung nicht richtig beschrieben sind und die Unterschätzung der gemessenen Variabilität eine Folge davon ist. Eine genauere Bewertung der regionalen Emissionen wird in Abschnitt 5.3 vorgenommen, wo die Messungen am Gäbris in der formalen Emissionsinversion verwendet werden.

Die Simulationen mit FLEXPART unter Verwendung der COSMO1 Analysefelder und nach Anpassung der Transportbeschreibung stellen keine Verbesserung gegenüber den FLEXPART-COSMO7 Simulationen dar (Abbildung 26). Im Gegenteil, die simulierte Variabilität ist nochmals deutlich geringer und auch die Korrelationen verbessern sich nur geringfügig (Abbildung 27). Allerdings scheint der Tagesgang der Konzentration etwas verbessert wiedergegeben zu werden, was in einem besser definierten Konzentrationsmaximum am Vormittag und einer stetigen Reduktion der Konzentration in den Nachmittagsstunden zu erkennen ist. Beides entspricht eher dem Verlauf der Messungen, allerdings tritt deren Maximum 3 Stunden später auf. Auffällig ist zudem, dass die Korrelation für die Tagesstunden besser ausfällt als für die Nachtstunden. Dieser verbesserte Tagesgang ist der einzige Hinweis auf eine verbesserte Beschreibung der lokalen, thermischen Windsysteme in den COSMO1 Analysefeldern im Vergleich zu COSMO7. Die deutlich geringere simulierte Variabilität in COSMO1 zeigt aber, dass die Verdünnung in FLEXPART-COSMO bei Verwendung von hochaufgelösten COSMO Feldern (COSMO2 und COSMO1) weiterhin viel zu gross ist und die innerhalb dieses Projekts gemachten Anpassungen an FLEXPART-COSMO noch nicht ausreichen, um das Modell mit dieser Auflösung erfolgreich für quantitative Transportsimulationen einzusetzen. Deshalb wurden die inversen Emissionsbestimmungen, die Daten vom Standort Gäbris verwenden (Abschnitt 5.3), weiterhin mit FLEXPART-COSMO7 und nur für nächtliche Beobachtungen (wie auch für die Bergstationen Jungfrauoch und Schauinsland) durchgeführt.

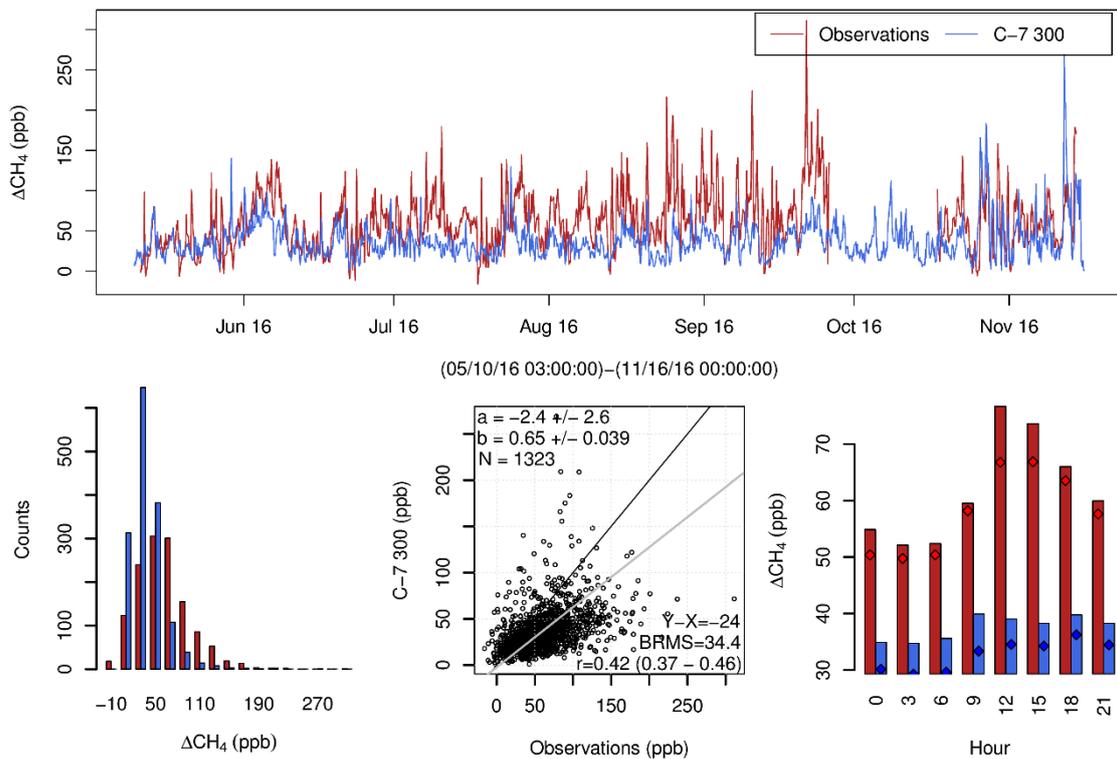


Abbildung 25: Vergleich der FLEXPART-COSMO7 Methansimulation mit Starthöhe 300 m über Grund (C-7 300) mit den Messungen am Standort Gähris. (oben) Zeitserien, (unten links) Histogramme, (unten Mitte) Korrelationsplot, (unten rechts) mittlerer (Balken) und median (Rauten) Tagesgang. Von den Messungen wurde der für die Station Jungfraujoch bestimmte Hintergrund abgezogen.

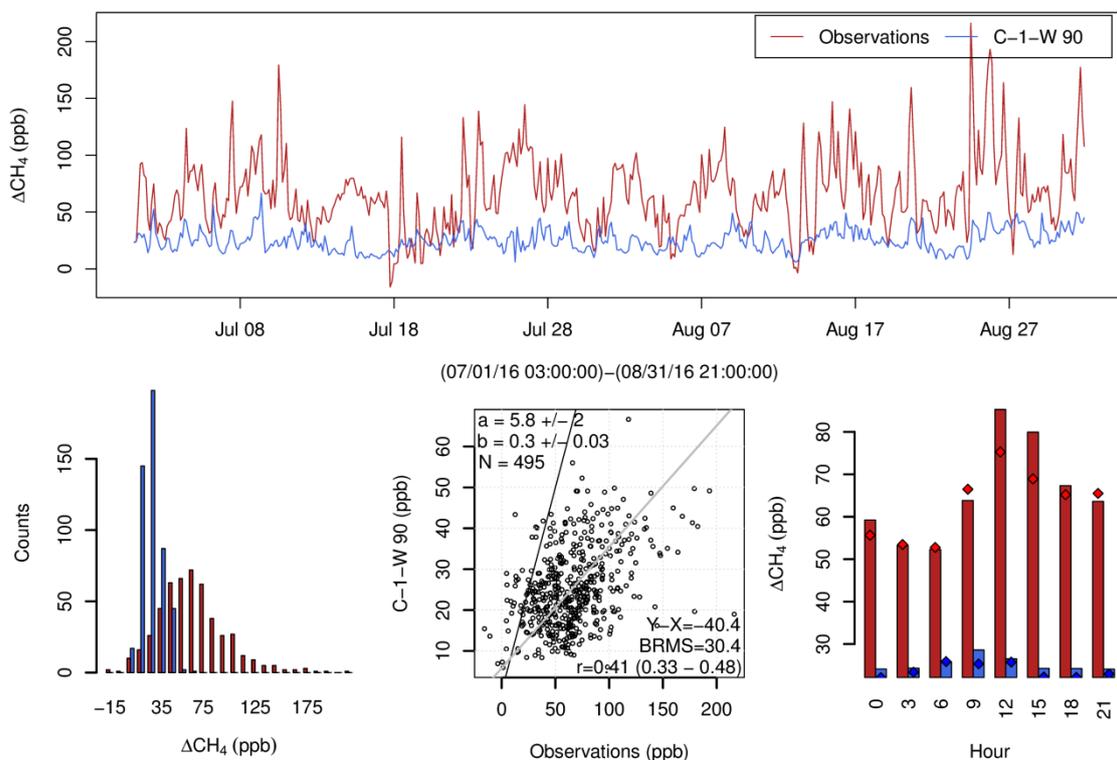


Abbildung 26: Wie Abbildung 25 aber für FLEXPART-COSMO1 Simulationen mit einer Starthöhe 90 m über Grund und nur für die Monate Juli und August 2016.

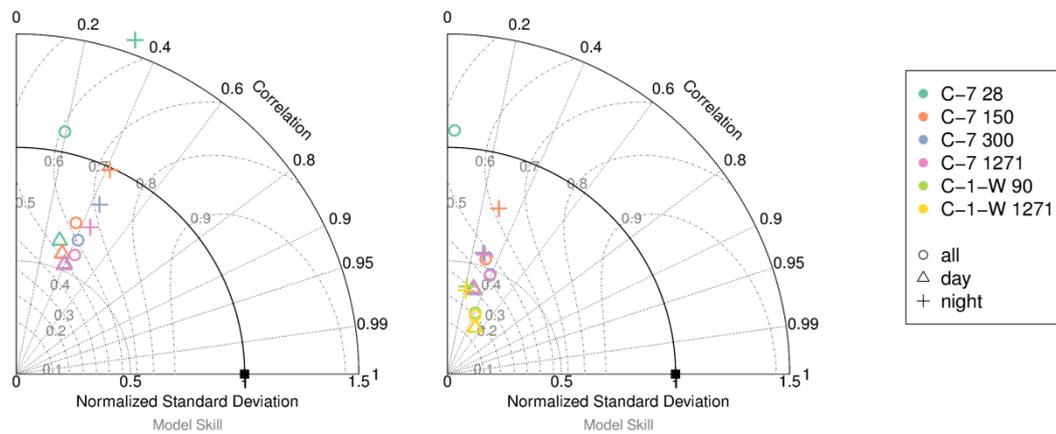


Abbildung 27: Taylor Plot zum Vergleich der Modelleistung (links) alle Monate und (rechts) nur Juli und August. Verschiedene Modellläufe/Starthöhen sind mit verschiedenen Farben entsprechend der Legende dargestellt. Separate Werte wurden für die während des Tages und während der Nacht ermittelten Daten dargestellt.

5 Abschätzung der Schweizer Methanemissionen mit Inversionsrechnungen

5.1 Zeitlicher Verlauf und Saisonalität der Emissionen

In diesem Abschnitt werden die Hauptresultate der vorliegenden Studie in Bezug auf die Validierung der Schweizer Methanemissionen präsentiert. Die leicht geänderte Inversionsmethode und die Auswahl eines anderen Sets von Sensitivitätsinversionen macht es notwendig, eingangs die Resultate der vorhergegangenen Studie mit denen aus dieser Studie für das Jahr 2013 zu vergleichen.

In Abbildung 28 ist die mittlere Differenz zwischen a-posteriori und a-priori (Abbildung 29) Emissionen, wie sie sich aus den 32 Sensitivitätsinversionen aus Henne et al. (2016) ergibt, verglichen mit der mittleren Differenz aus den 4 Sensitivitätsinversionen dieser Studie für das Jahr 2013 und mit dem bisherigen a-priori Emissionen. Henne et al. (2016) haben als mittlere Schweizer a-posteriori Emission für den Zeitraum März 2013 bis Februar 2014 einen Wert von $196 \pm 18 \text{ Gg yr}^{-1}$ angegeben. Dieser Wert vergleicht sich sehr gut mit dem hier gewonnenen von $195 \pm 11 \text{ Gg yr}^{-1}$. Allerdings muss festgestellt werden, dass es bei der räumlichen Verteilung durchaus Unterschiede gibt. In den neuen Resultaten ist ein Anstieg in den a-posteriori Emissionen östlich des Standorts Beromünster recht ausgeprägt, während die klare Reduktion der a-posteriori Emissionen westlich von Beromünster nicht mehr im gleich Mass vorhanden ist. Ebenfalls verschwunden ist die Emissionsreduktion östlich von Lägern-Hochwacht. Im Gegensatz dazu bleibt das Signal erhöhter a-posteriori Emissionen in der Nordostschweiz auch mit dem neuen Inversionslauf erhalten. Woraus die Unterschiede zwischen neuem und altem Setup im Detail resultieren, konnte nicht abschliessend geklärt werden. Die entscheidende Rolle dürfte die Auswahl der Sensitivitätsläufe spielen, z.B. wird in der hier vorliegenden Studie mehr Gewicht auf Inversionen mit saisonaler Variabilität in den Emissionen gelegt, bei denen die a-posteriori Emissionen östlich von Lägern grundsätzlich etwas höher ausfallen.

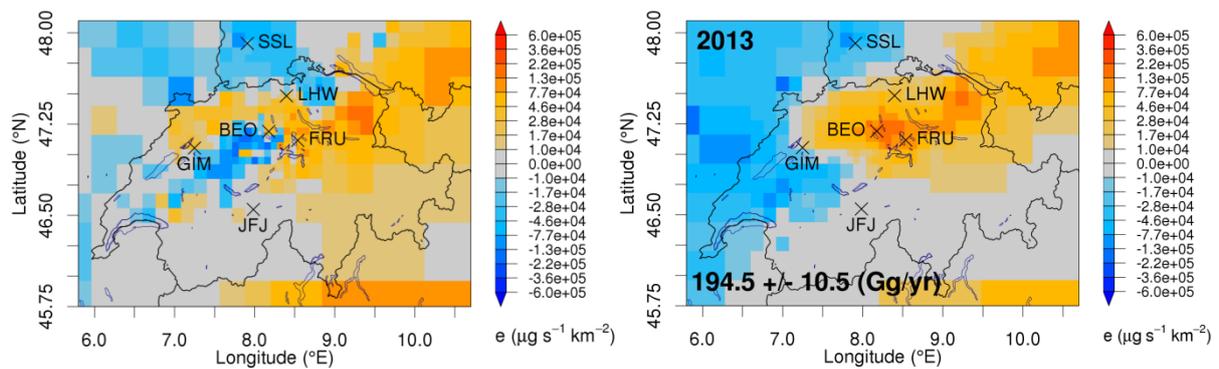


Abbildung 28: Absolute Differenzen zwischen a-posteriori und a-priori Emissionen: Mittel aus Henne et al. (2016) (links) und Mittel über die vier Sensitivitätsinversionen mit bisherigen a-priori (rechts).

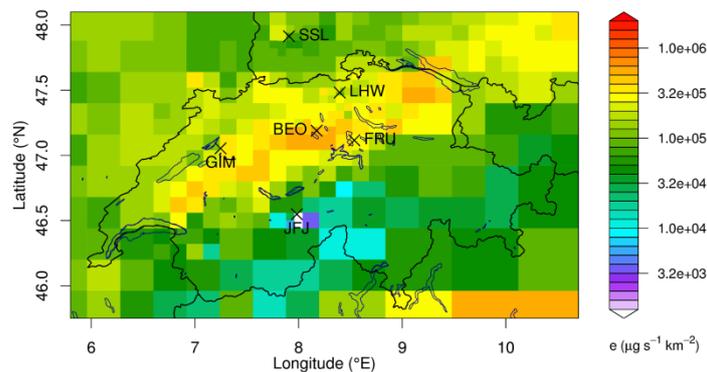


Abbildung 29: Räumliche Verteilung der a-priori Emissionen für den Fall des erhöhten totalen a-priori (upPrior). Innerhalb der Schweiz folgt die Verteilung der des in Hiller et al. (2014) beschriebenen Inventars, angepasst auf die aktuellen Emissionstotalen des NIR, ausserhalb der Schweiz wurde das Europäischen TNO/MACC Inventar (Kuenen et al., 2014) verwendet.

Die mittleren Differenzen zwischen a-posteriori und a-priori Emissionen für die Jahre 2013 bis 2016, wie sie sich aus dem Mittel über je 8 Sensitivitätsinversionen ergeben, zeigen ein recht stabiles räumliches Muster im Verlauf der Zeit (Abbildung 30). Für alle Jahre bleibt die Tendenz zu geringeren a-posteriori Emissionen westlich von Beromünster erhalten. Weiterhin sind erhöhte a-posteriori Emissionen jeweils in der Nordostschweiz aber auch direkt östlich von Beromünster zu finden. Das gleiche Bild ergibt sich, wenn über alle 32 Sensitivitätsinversionen aus allen 4 Jahren gemittelt wird (Abbildung 31). Die Schweizer Gesamtemissionen bleiben im untersuchten Zeitraum relativ stabil, schwanken allerdings von $191 \pm 21 \text{ Gg yr}^{-1}$ für 2016 bis zu $213 \pm 14 \text{ Gg yr}^{-1}$ für 2015 und ergeben im Mittel über alle Jahre $202 \pm 16.8 \text{ Gg yr}^{-1}$. Die Schwankungen sind im Bereich der angegebenen a-posteriori Unsicherheiten. Die hier und in Abbildung 30 gegebenen Unsicherheiten stellen dabei das Maximum aus mittlerer, analytischer a-posteriori Unsicherheit (siehe σ_a in Tabelle 4) und der Bias-korrigierten Standardabweichung über die 8 Sensitivitätsinversionen (strukturelle Unsicherheit, σ_s in Tabelle 4) dar. Bis auf das Jahr 2014 war jeweils die strukturelle Unsicherheit klar grösser als die mittlere analytische Unsicherheit. Aufgrund der relativ grossen Unsicherheiten und Schwankungen von Jahr zu Jahr ist es zu früh, um aus diesen Ergebnissen einen Trend ablesen zu können. Der Trend der im letzten UNFCCC Report angegebenen Schweizer Methanemissionen war für den Zeitraum 2013 bis 2015 lediglich -0.5 Gg yr^{-1} pro Jahr (FOEN, 2017), kann angesichts der hier erzielten Unsicherheiten aber weder falsifiziert noch bestätigt werden.

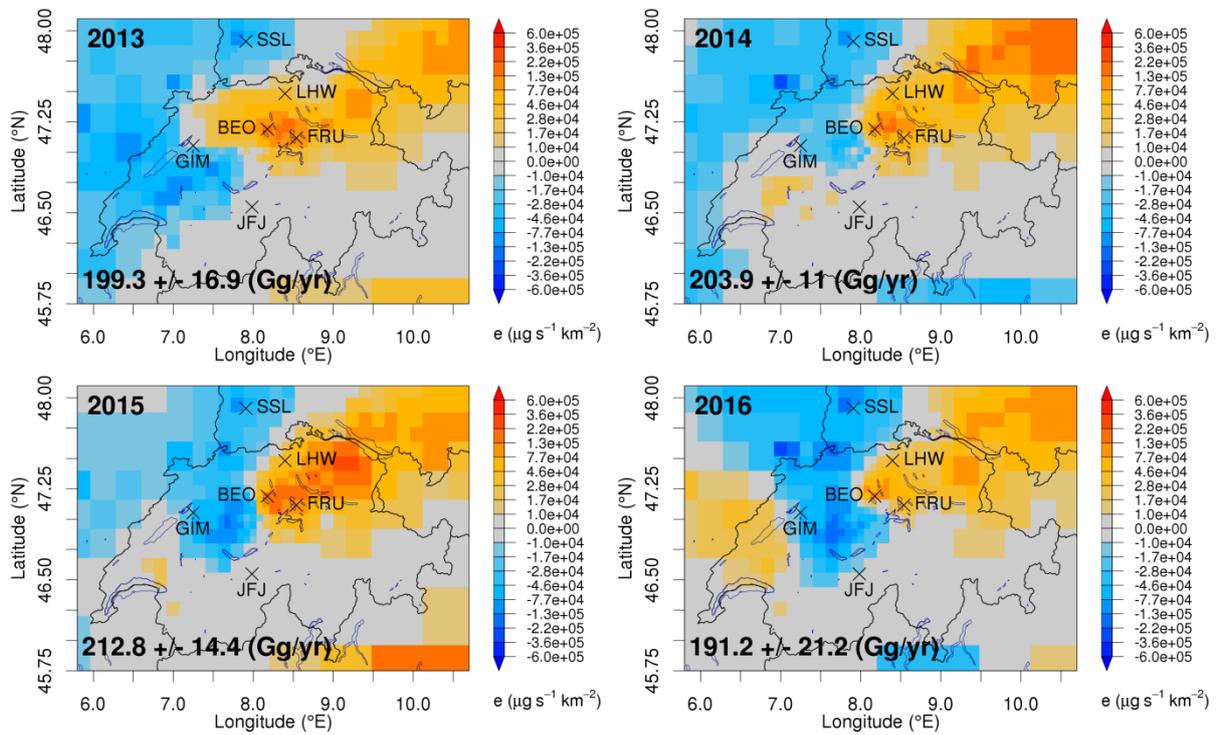


Abbildung 30: Absolute Differenzen zwischen a-posteriori und a-priori Emissionen als Mittel über 8 Sensitivitätsinversionen pro Jahr. Die gegebenen totalen Emissionen beziehen sich ausschliesslich auf Schweizer Emissionen. Die Messungen an der Station Gäbris für das Jahr 2016 wurden hier nicht verwendet.

Tabelle 4: Übersicht über die Schweizer Methanemissionen ermittelt aus 8 Sensitivitätsinversionen für jedes Jahr: a-priori Emissionen und deren analytische Unsicherheit, E_a , a-posteriori Emissionen und die im Text diskutierte Unsicherheit, E_b , strukturelle, σ_s , und analytische, σ_a , Unsicherheit der a-posteriori Emissionen. Alle Werte sind in Einheiten Gg yr^{-1} gegeben.

Jahr	E_b	E_a	σ_s	σ_a
2013	193±31	199±16.9	16.9	10.8
2014	193±31	204±11.0	10.0	11.0
2015	194±31	213±14.4	14.4	10.5
2016	193±31	191±21.2	21.2	10.0
Mittel	193±31	202±16.8	16.8	10.6

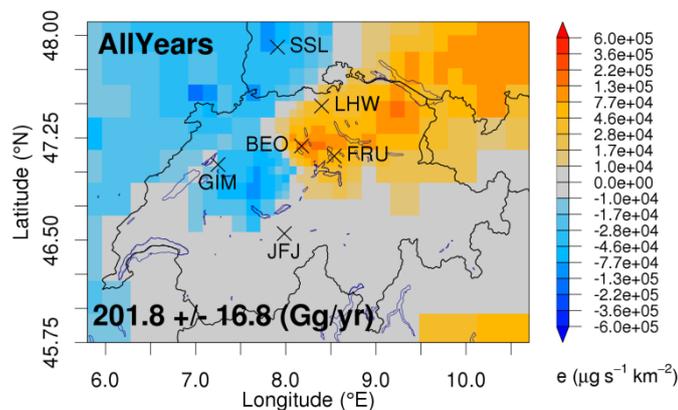


Abbildung 31: Absolute Differenzen zwischen a-posteriori und a-priori Emissionen als Mittel über alle 32 Sensitivitätsinversionen aus allen Jahren. Die gegebenen totalen Emissionen beziehen sich ausschliesslich auf Schweizer Emissionen.

Im Gegensatz zu den von Jahr zu Jahr sehr stabilen analytischen Unsicherheiten variiert die strukturelle Unsicherheit, die sich aus der Streuung der einzelnen Sensitivitätsinversionen ergibt, stärker (Tabelle 4). Auch an der räumlichen Verteilung der analytischen Unsicherheitsreduktion ändert sich von Jahr zu Jahr sehr wenig (Abbildung 32). Beides zeigt einerseits, dass man mit demselben Messsystem trotz unterschiedlicher, meteorologischer Bedingungen eine ähnlich gute räumliche Abdeckung von Jahr zu Jahr erzielen kann. Andererseits scheint es Jahre zu geben, in denen die Ergebnisse der Inversion sehr sensitiv gegenüber der Wahl der Inversionsparameter sind.

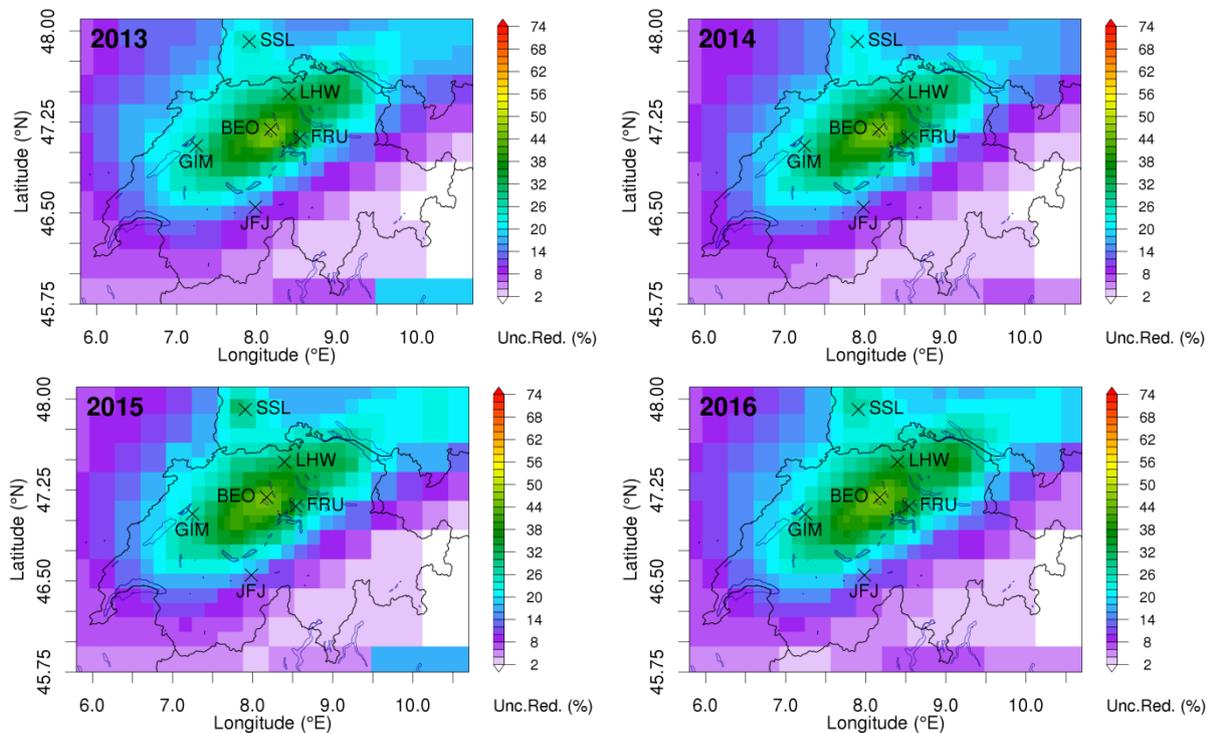


Abbildung 32: Prozentuale Änderung der Unsicherheit der Methanemissionen vom a-priori zum a-posteriori Zustand, berechnet als die mittlere analytische Unsicherheit aus 8 Sensitivitätsinversionen pro Jahr.

Für die oben durchgeführten Inversionen für die verschiedenen Jahre wurden anfangs alle Inversionsparameter in gleicher Weise für jedes Jahr angewandt. Dies führte allerdings zu problematischen Ergebnissen bezüglich der Schätzung der a-posteriori Basislinie. Daher wurde ein zusätzliches Kriterium eingeführt, dass die Güte der geschätzten a-priori Basislinie bewerten soll. Dabei wird der Anteil der Beobachtungen, die unter a-posteriori Basislinie liegen bestimmt. Grundsätzlich sollte dies nur ein kleiner Anteil der Beobachtungen sein. Allerdings war dieser Anteil für die Jahre 2015 und 2016 stark erhöht, während andere Parameter der Modellgüte (Korrelation, RMSE, Taylor Skill Score) ähnlich waren wie in 2013 und 2014. In Abbildung 33 ist dieser Anteil beispielhaft für die Station Beromünster für alle durchgeführten Sensitivitätsanalysen aller Jahre auf der x-Achse aufgetragen. Zusätzlich sind die ermittelten Schweizer Emissionen auf der y-Achse gezeigt. Die Resultate für die Station Lägern-Hochwacht ähneln stark den hier gezeigten. Offene Symbole bezeichnen die Standard-Inversionen mit einer a-priori Unsicherheit des Hintergrunds von 12.5 ppbv. Für die Jahre 2013 und 2014 lagen, je nach Inversion, zwischen 5 und 8 % der Beobachtungen in Beromünster unterhalb der a-posteriori Basislinie. Im Gegensatz dazu war dieser Anteil in den Jahren 2015 und 2016 auf Werte bis 13 % erhöht und gleichzeitig waren in 2016 die a-posteriori Emissionen bis auf 140 Gg yr⁻¹ eingebrochen. Reduziert man die a-priori Unsicherheit der Basislinie für die Jahre 2015 und 2016 um 1/3 auf 8.4 ppbv, verringern sich die Anteile der Beobachtungen unter der Basislinie für diese Jahre deutlich und kommen im Bereich der Jahre 2013 und 2014 zu liegen (gefüllte Symbole in Abbildung 33). Es konnte im Rahmen dieser Studie kein objektiveres Kriterium gefunden werden, um die Unsicherheit der a-priori Basislinie festzulegen. Es muss daher wie bereits in der vorhergegangenen Studie und wie in Abschnitt 5.2 weiter diskutiert festgestellt werden, dass die Bestimmung der Basislinie für eine regionale Inversion, wie sie hier für ein

relativ kleines Modellgebiet angewandt wird, sehr kritisch für den absoluten Wert der a-posteriori Emissionen ist.

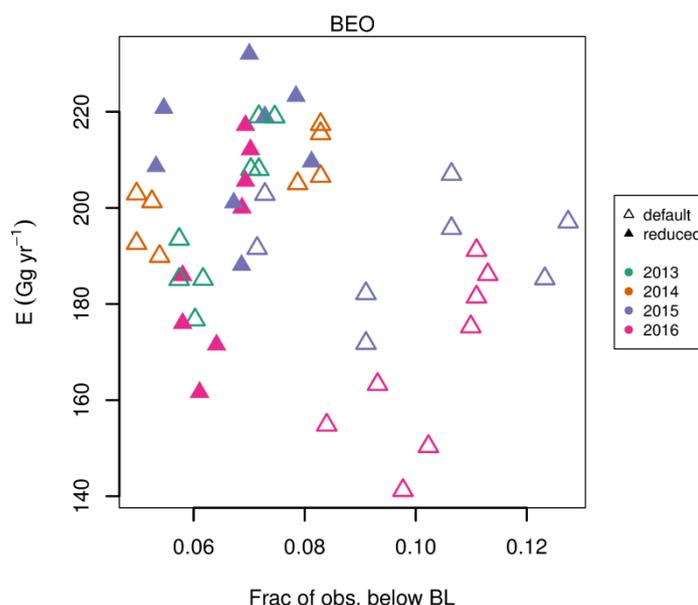


Abbildung 33: Totale Schweizer a-posteriori Emissionen aller Sensitivitätsinversionen aufgetragen gegen den Anteil Beobachtungen unterhalb der a-posteriori Basislinie für die Station Beromünster.

Die Modell/Inversionsleistung blieb für die 4 untersuchten Jahre relativ stabil. In Abbildung 34 ist der sogenannte Taylor Skill Score der a-posteriori Simulationen oberhalb der Basislinie für die Stationen Beromünster und Lägern-Hochwacht für alle Jahre und Sensitivitätsinversionen dargestellt. Der Taylor Skill Score, S , kombiniert den Korrelationskoeffizient und gemessene, σ_o , sowie simulierte, σ_m , Variabilität zu einem einzigen Parameter um die Modellgüte zu bewerten (Taylor, 2001)

$$S = \frac{4(1 + R)}{(\sigma_f + 1/\sigma_f)^2 (1 + R_0)}, \quad (3)$$

wobei σ_f die simulierte Variabilität dividiert durch die gemessene darstellt. R_0 ist eine Abschätzung der maximal erreichbaren Korrelation. Werte von S reichten von 0.80 bis 0.88 für die Station Beromünster und waren nur unwesentlich grösser für die Station Lägern-Hochwacht (0.84 bis 0.91). Einerseits wurden im Mittel die besseren Taylor Skill Scores für die niedrigeren Partikelstarthöhen erzielt. Andererseits lässt sich in Abbildung 34 erkennen, dass die ermittelten a-posteriori Emissionen von Jahr zu Jahr weniger Variabilität aufweisen, wenn die höheren Starthöhen verwendet werden. Dies kann aber auch heissen, dass aufgrund der schlechteren Modellleistung die a-posteriori Emissionen stärker von den a-priori Emissionen geleitet werden. Es ist zumindest für die Station Lägern-Hochwacht auffällig, dass Jahre mit deutlich besserer Modellleistung für die niedrigere Starthöhe (2013, 2016) mit stark verminderten a-posteriori Emissionen einhergehen. Dieser Zusammenhang ist am Standort Beromünster nicht gegeben. Insgesamt kann allerdings kein Zusammenhang zwischen Modellleistung und totalen Schweizer Emissionen gesehen werden. Es konnte auch keine klare Tendenz für bessere Modellleistung für einzelne Jahre gefunden werden. Wenn man beide Stationen berücksichtigt, kann allenfalls für das Jahr 2015 eine überdurchschnittliche Modellleistung erkannt werden. Für andere Jahre variierte die Modellleistung zwischen den Stationen und war z.B. für 2014 und Beromünster unterdurchschnittlich während sie für Lägern-Hochwacht durchschnittlich war. Ähnlich aber umgekehrt in Bezug auf die Stationen verhielt es sich in 2016.

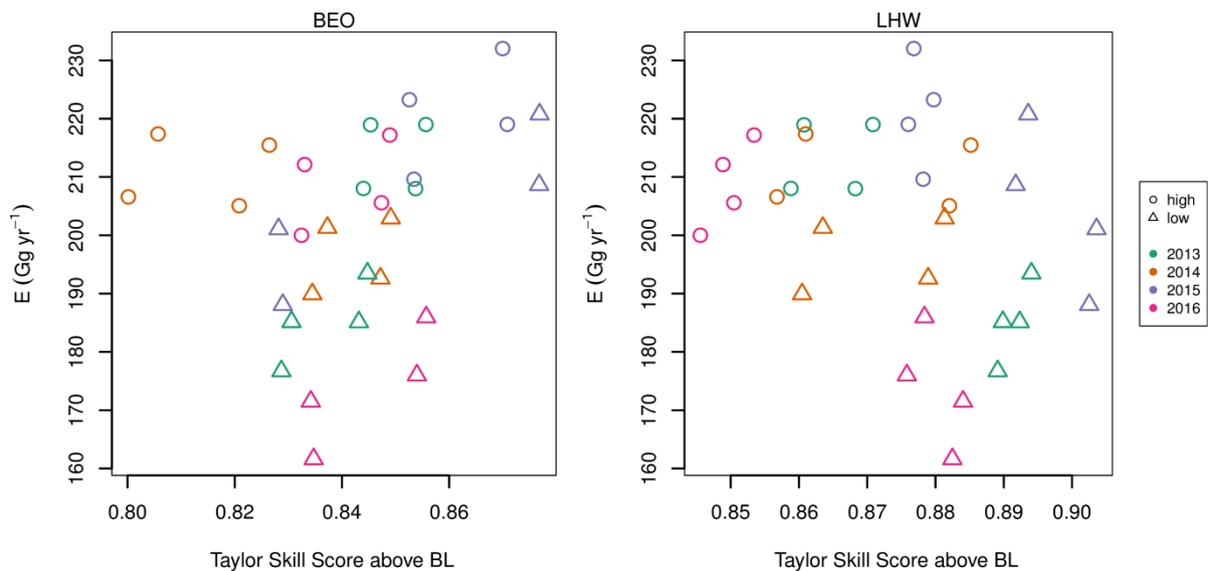


Abbildung 34: Totale Schweizer a-posteriori Emissionen aller Sensitivätsinversionen aufgetragen gegen die a-posteriori Modellleistung dargestellt als Taylor Skill Score für das Signal oberhalb der Baseline für die Stationen (links) Beromünster und (rechts) Lägern Hochwacht.

Die Hälfte der Sensitivätsinversionen wurde mit saisonal variablen Emissionen durchgeführt, wobei für alle Jahreszeiten dasselbe a-priori verwendet wurde. Der jahreszeitliche Verlauf der totalen Schweizer Emissionen ist in Abbildung 35 gegeben. Die Wintermonate, mit Ausnahme von 2014, zeigten dabei immer die geringsten a-posteriori Emissionen. Allerdings gab es zwischen den Jahren starke Unterschiede. Während in den Wintermonaten in 2014 die a-posteriori Emissionen auf dem mittleren a-priori Niveau von 194 Gg yr^{-1} verharrten, wurden sie im Winter 2016 zu lediglich 150 Gg yr^{-1} bestimmt. Die mittleren a-posteriori Emissionsänderungen (Abbildung 36) zeigen, dass diese negativen Differenzen am stärksten um den Standort Beromünster und westlich davon ausgeprägt sind. Nimmt man an, dass die Emissionskategorie mit den stärksten jahreszeitlichen Schwankungen die Hofdüngernutzung ist, würde die starke Reduktion im Winter 2016 bedeuten, dass deren Emissionen praktisch auf null gesunken wären und es müssten zusätzlich noch Emissionen anderer Quellen reduziert gewesen sein (Deponien, Nutztierhaltung). Die starken Schwankungen in den Winteremissionen von Jahr zu Jahr lassen sich nicht einfach über klimatologische Parameter erklären. So waren z.B. die durchschnittlichen Wintertemperaturen in den Jahren 2013 bis 2016 lediglich um bis zu 1°C unterschiedlich (Station Lägern-Hochwacht). Neben der klaren Tendenz zu kleineren Emissionen in den Wintermonaten ergibt sich für die anderen Jahreszeiten ein gemischtes Bild. Im Mittel findet man die maximalen Emissionen im Frühjahr, allerdings nicht für alle Jahre. Die Sommeremissionen waren für die Jahre 2013 und 2014 unterdurchschnittlich, für 2015 und auch 2016 dann aber stark erhöht. A-posteriori Emissionen während der Herbstmonate waren in allen Jahren konsistent höher als die a-priori Emissionen. Für alle drei Jahreszeiten waren erhöhte a-posteriori Emissionen am ausgeprägtesten rund um und östlich vom Standort Beromünster sowie in der Nordostschweiz, während weiter westlich von Beromünster meist geringere a-posteriori Emissionen auftraten.

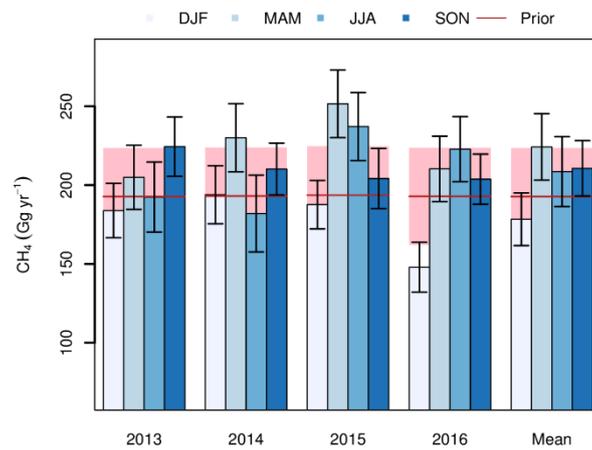


Abbildung 35: Mittlere Schweizer Methanemissionen nach Jahreszeit. A-priori Werte und Unsicherheit sind als rote Linie und rosa Unsicherheitsband dargestellt. A-posteriori Werte sind als Balkendiagramm und Unsicherheitsbalken dargestellt. Alle Unsicherheiten beziehen sich auf 1- σ Vertrauensbereiche und beziehen sich auf die mittlere analytische Unsicherheit der Inversion.

Tabelle 5: Mittlere Schweizer a-posteriori Methanemissionen nach Jahreszeit (Gg yr^{-1}). Alle Unsicherheiten beziehen sich auf 1- σ Vertrauensbereiche und beziehen sich auf die mittlere analytische Unsicherheit der Inversion.

Jahr	DJF	MAM	JJA	SON
2013	184 \pm 17	205 \pm 20	192 \pm 22	224 \pm 19
2014	194 \pm 18	230 \pm 22	182 \pm 24	210 \pm 16
2015	188 \pm 15	252 \pm 21	237 \pm 22	204 \pm 19
2016	148 \pm 16	210 \pm 21	223 \pm 21	204 \pm 16
Mittel	178 \pm 17	224 \pm 21	209 \pm 22	211 \pm 18

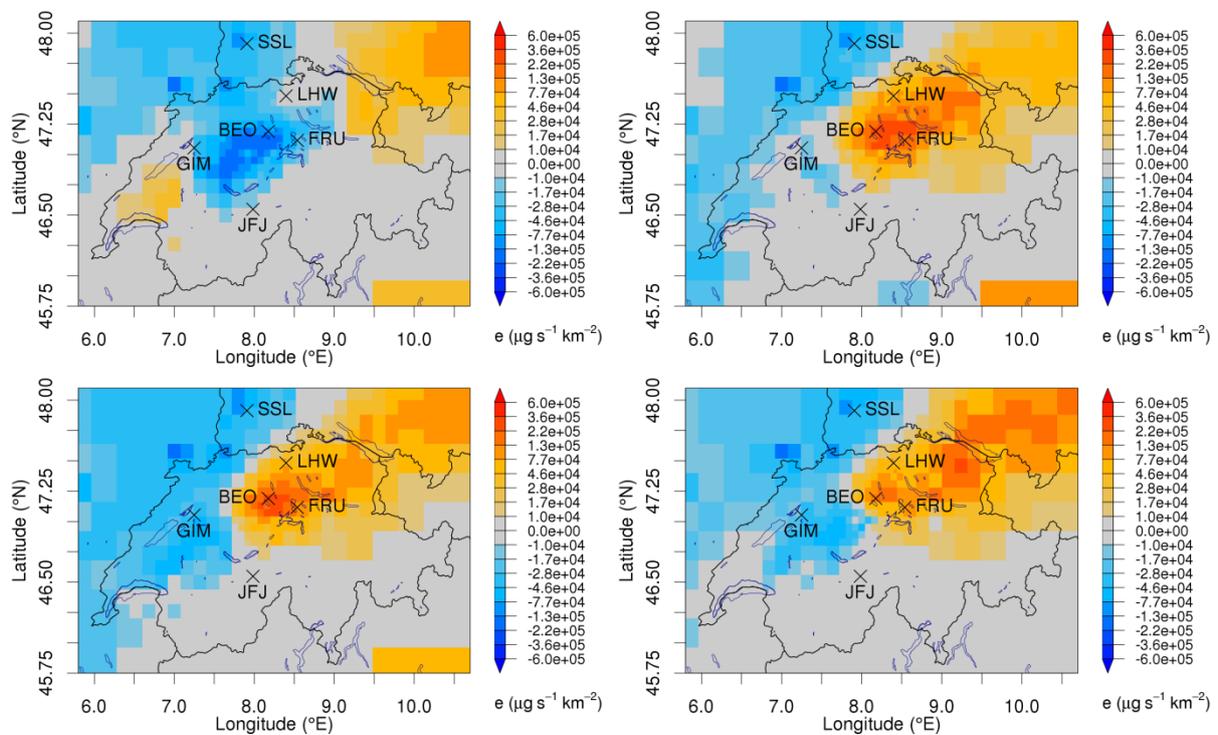


Abbildung 36: Saisonalität der absoluten Differenzen zwischen a-posteriori und a-priori Emissionen als Mittel über alle 16 Sensitivitätsinversionen mit saisonalen Emissionen und für alle Jahre: (oben links) Dezember, Januar, Februar, (oben rechts) März, April, Mai, (unten links) Juni, Juli, August, (unten rechts) September, Oktober, November.

5.2 Sensitivität gegenüber Wahl der a-priori Basislinie

Wie bereits im vorangegangenen Abschnitt angedeutet, spielen die in der Inversion verwendeten a-priori Basislinien und deren Unsicherheiten eine wichtige Rolle bei der Bestimmung der totalen Emissionen. Für alle bisherigen Inversionen wurden die Basislinien aus den statistisch ausgewählten Hintergrundmessungen am Jungfraujoch bestimmt. Hier soll nun untersucht werden, ob die Verwendung von Basislinien aus globalen Methansimulationen (siehe Abschnitt 2.4.3) a) zu geänderten Emissionstotalen führt und b) wie stark die ermittelte räumliche Emissionsverteilung von der gewählten Basislinie abhängt. Letzteres ist insbesondere auch in Bezug auf das gefundene Emissionsmaximum in der Nordostschweiz interessant, da bislang der Verdacht bestand, dass systematische Abweichungen in der Basislinie (z.B. stets zu niedrige Werte bei Ostadvektion) zu systematischen Fehlern in der Emissionsverteilung führen könnten. Die Inversionen mit globalen Modellbasislinien wurden lediglich für das Jahr 2013, in dem alle Modellergebnisse zur Verfügung standen, und für TM5-GOSAT und FLEXPART-CTM durchgeführt. Dabei wurde das bisherige, tiefere a-priori Inventar verwendet und es wurden je 4 Sensitivitätsversionen (hohe/tiefe Partikelstarthöhe und konstante/saisonal variable Emissionen) verwendet. Da die aus TM5-NOAA ermittelten Basislinien denen von TM5-GOSAT sehr ähnlich waren (Abschnitt 2.4.3), wurden diese nicht weiter verwendet.

Verwendet man die aus den Modellen gewonnenen Basislinien direkt in der Inversion und lässt sie nicht als Teil des Zustandsvektors optimieren, ergeben sich für beide Modelle deutlich erhöhte Schweizer Gesamtemissionen: $260 \pm 8 \text{ Gg yr}^{-1}$ und $240 \pm 9 \text{ Gg yr}^{-1}$ für TM5-GOSAT bzw. FLEXPART-CTM, die 33% beziehungsweise 23% über dem mittleren Wert aus dem vorangegangenen Abschnitt von $195 \pm 11 \text{ Gg yr}^{-1}$ liegen. Räumlich werden diese stark erhöhten Flüsse hauptsächlich im zentralen Mittelland in der Umgebung von Beromünster aber auch wieder in der Nordostschweiz verortet. Nennenswerte niedrigere a-posteriori Emissionen finden sich nur im Fall der FLEXPART-CTM Basislinie und nur ausserhalb der Schweiz in Frankreich.

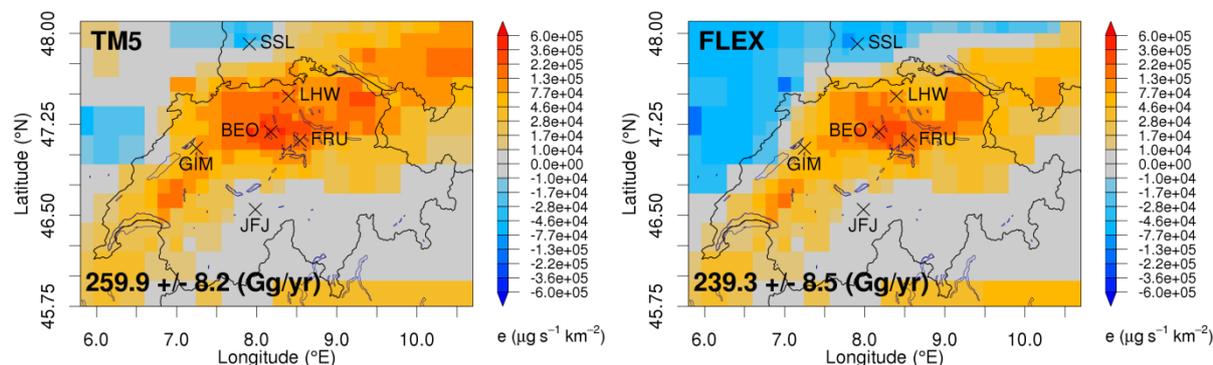


Abbildung 37: Mittlere Differenz zwischen a-posteriori und a-priori Emissionen unter Verwendung der nicht optimierten Basislinie aus (links) TM5-GOSAT und (rechts) FLEXPART-CTM.

Wird die aus den Modellen gewonnene Basislinie allerdings wie in den bisherigen Inversionen wieder als Teil des Zustandsvektors durch die Inversion angepasst, so erhält man erneut totale Schweizer Emissionen, die den bisherigen wesentlich ähnlicher sind: $197 \pm 9 \text{ Gg yr}^{-1}$ und $206 \pm 10 \text{ Gg yr}^{-1}$ für die Inversion mit TM5-GOSAT bzw. FLEXPART-CTM Basislinie. Auch die gewonnene räumliche Verteilung ähnelt in diesem Fall erneut mehr den bisherigen Resultaten: niedrigere (oder weniger stark erhöhte) a-posteriori Emissionen westlich von Beromünster und höhere Emissionen östlich von Beromünster und in der Nordostschweiz.

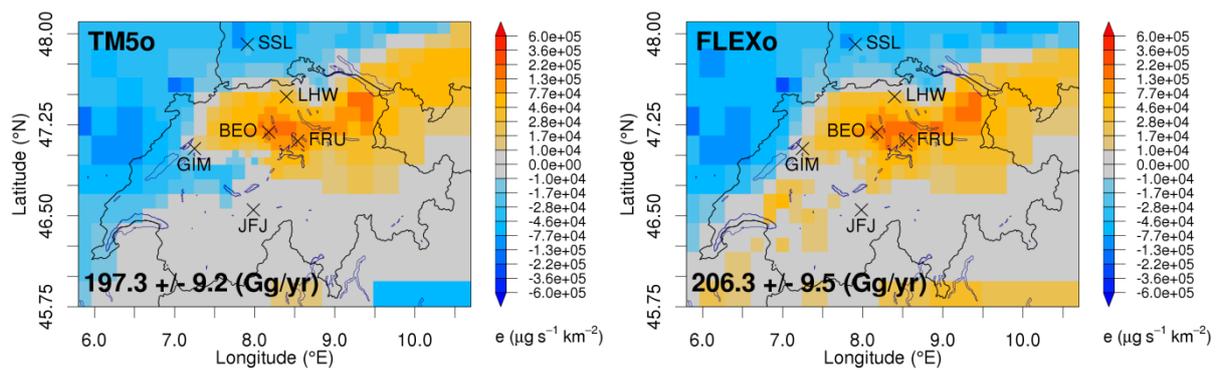


Abbildung 38: Wie Abbildung 37 aber mit optimierter Basislinie.

Die Bestätigung der räumlichen Verteilung der bisherigen a-posteriori Emissionen durch die hier gewonnenen verleiht der bisher und auch in diesem Bericht für die Jahre 2013 bis 2016 verwendeten Methodik für die Basislinienbehandlung nachträglich zusätzliche Glaubwürdigkeit. Die Güte der bisherigen Basislinienanpassung kann auch in Abbildung 39 abgelesen werden, in der die verschiedenen Basislinien (a-priori und a-posteriori) für die Stationen Beromünster und Jungfrauoch verglichen werden. Es ist für Beromünster deutlich zu erkennen, wie die bisherige Korrektur der Jungfrauoch Basislinie diese viel besser mit den modellbasierten Basislinien übereinstimmen lässt (vergleiche hell-blaue a-priori und blaue a-posteriori Linie mit hell-grüner und rosa Modell a-priori). In Abbildung 39 ist ebenfalls zu erkennen, wie die beiden modellbasierten Basislinien nach der Inversion näher zusammenrücken, wobei die TM5-GOSAT Basislinie meist nach oben korrigiert wird, während die FLEXPART-CTM Basislinie teilweise auch nach unten korrigiert wird (November/Dezember). Interessant ist auch die Phase sehr hoher Basiswerte Ende Februar, die aufgrund von Advektion osteuropäischer Luftmassen zustande kam. Solche Episoden standen bisher in Verdacht, für das Emissionsmaximum in der Nordostschweiz verantwortlich zu sein. Obwohl beide modellbasierte Basislinien zu diesem Zeitpunkt sehr viel höhere Werte als das Jungfrauoch a-posteriori zeigen, ändert sich an der Erhöhung der Emissionen in der Nordostschweiz fast nichts. Am Jungfrauoch sind die Variationen und Anpassungen der Basislinie wesentlich kleiner (Abbildung 40). Aber auch hier ist zu erkennen, wie die optimierte Jungfrauoch-Basislinie besser mit den modellbasierten übereinstimmt als ihr a-priori.

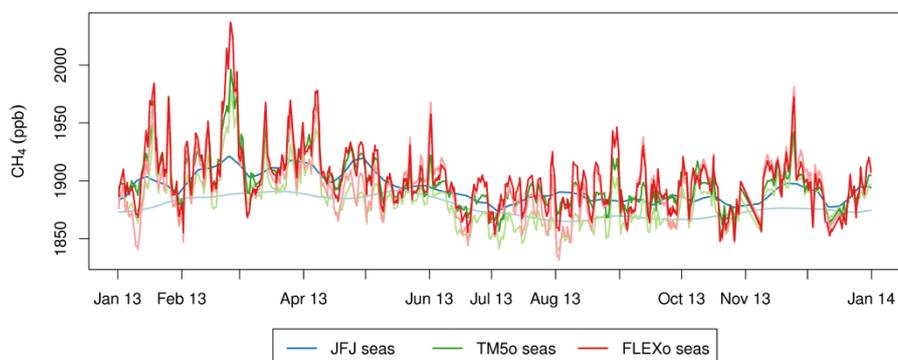


Abbildung 39: (hell) a-priori und (dunkel) a-posteriori Basislinien für den Standort Beromünster und 3 verschiedene Inversionen: (blau) Standardinversion mit Jungfrauoch Basislinie, (grün) Inversion mit TM5-GOSAT Basislinie und (rot) FLEXPART-CTM Basislinie.

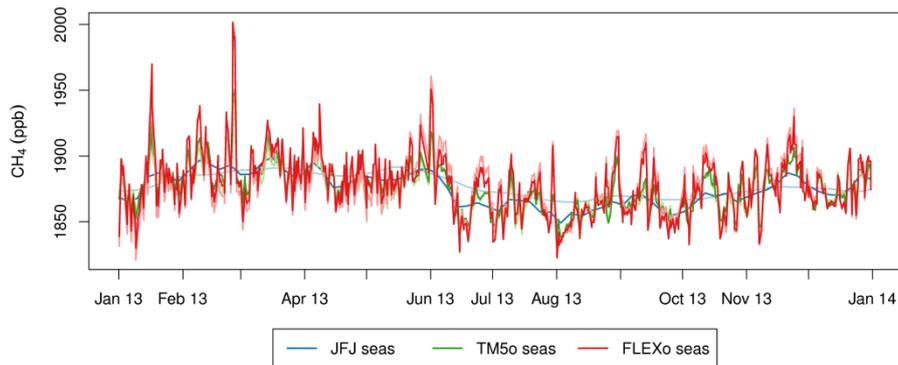


Abbildung 40: Wie Abbildung 39 aber für Standort Jungfraujoch.

Der Zusammenhang zwischen den ermittelten Schweizer Emissionen und der mittleren a-posteriori Konzentration am Standort Beromünster und für die in diesem Abschnitt untersuchten Inversionen ist in Abbildung 41 dargestellt. Klar zu erkennen ist, wie die Verwendung einer fixierten TM5 Basislinie zu erhöhten Emissionstotalen führt und gleichzeitig die mittlere Basislinienkonzentration rund 12 ppbv tiefer liegt als für die bisherige Jungfraujoch (JFJ)-basierte a-posteriori Basislinie. Derselbe Zusammenhang kann im Fall der FLEXPART-CTM-basierten Basislinie nicht gesehen werden. Deren Verwendung führt ebenfalls zu hohen a-posteriori Emissionen, ohne dass die mittlere Basislinie tiefer liegt als die bisherige. Für die optimierten, modellbasierten Basislinien ist ebenfalls kein Zusammenhang zwischen tieferer Basislinie und höheren a-posteriori Emissionen zu erkennen. Im Gegenteil steigen in diesen Fällen nun die a-posteriori Emissionen mit steigendem mittleren Hintergrund von JFJ, über TM5 bis zu FLEXPART-CTM basierter Basislinie an, ein Verhalten, das widersprüchlich scheint und hier nicht weiter untersucht werden konnte.

Die Modellleistung (hier erneut als Taylor Skill Score oberhalb der Basislinie bewertet) zeigt erneut keine Abhängigkeit von den totalen Schweizer Emissionen. Es kann allerdings festgestellt werden, dass die beste Modellleistung mit der nicht optimierten TM5-GOSAT Basislinie erreicht wurde, alle sonstigen Inversionen aber nicht besser abschnitten als die Standard-Inversion mit optimierter JFJ-Basislinie. Im Mittel schnitten die Inversionen mit FLEXPART-CTM-basierter Basislinie schlechter ab als die, die TM5-GOSAT verwendenden. Betrachtet man allerdings die Modellleistung für die das Gesamtsignal (nicht gezeigt) schneiden eindeutig die Inversionen mit optimierten, modellbasierten Basislinien am besten ab und FLEXPART-CTM und TM5-GOSAT liegen in diesem Vergleich gleich auf. Offenbar wird in diesen Fällen ein grosser Teil der beobachteten Variabilität bereits über die Basislinie erklärt.

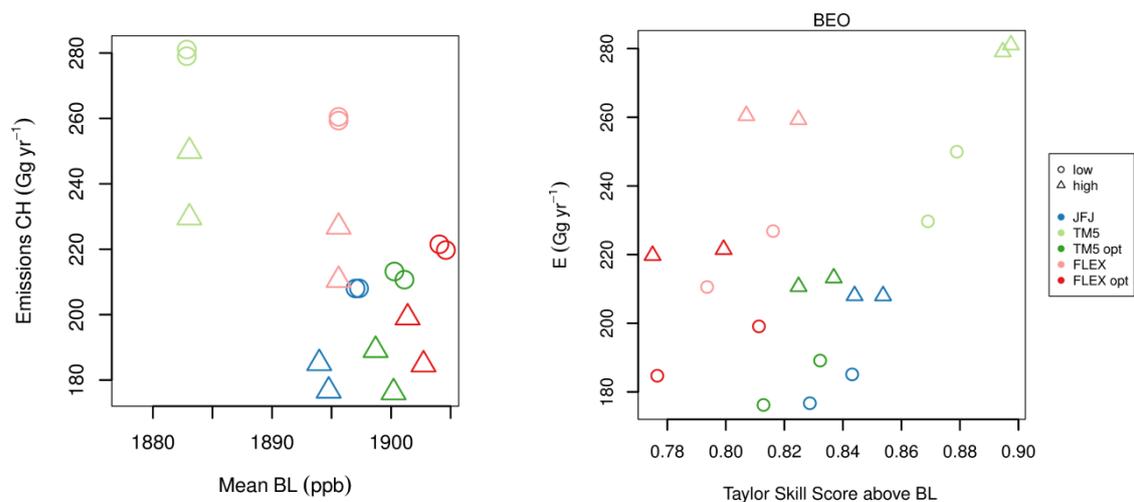


Abbildung 41: Zusammenhang zwischen (links) mittlerer Konzentration der a-posteriori Basislinie, (rechts) Modellleistung (Taylor Skill Score oberhalb der Basislinie) und den totalen Schweizer Emissionen für Sensitivätsinversionen mit verschiedenen a-priori Basislinien und für den Standort Beromünster.

5.3 Berücksichtigung der Zusatzmessungen am Gäbris in 2016

Im Folgenden soll die Emissionsinversion für das Jahr 2016 unter Einbezug der zusätzlichen Messungen in der Nordostschweiz (Gäbris) wiederholt werden. Wie oben erläutert, wurden dafür, wie für alle anderen Standorte, die Simulationen des FLEXPART-COSMO7 Modells verwendet. Da dieses Modell nicht besonders gut geeignet war, die beobachteten starken Methanamplituden während eines Tages wiederzugeben, wurden für die Inversion nur die nächtlichen Messungen (03:00 und 06:00 UTC) verwendet. Dies entspricht dem Vorgehen an den anderen Bergstationen (Jungfrauoch und Schauinsland). Für Gäbris wurde ebenfalls die Jungfrauoch Basislinie als a-priori verwendet und deren Optimierung als Teil des Zustandsvektors zugelassen.

Da für Gäbris lediglich Messungen während 6 Monaten vorlagen, wurde die Inversionsgitterbildung, die auf den mittleren Quellsensitivitäten beruht (Henne et al., 2015), so angepasst, dass Gäbris trotz weniger Messungen das gleiche Gewicht bekommt wie die anderen Messstandorte. So wird sichergestellt, dass die Inversionsgitterauflösung auch in der Umgebung von Gäbris hoch genug ist, um eine sinnvolle Simulation/Inversion zu erlauben. Analog zu Abschnitt 5.1 wurden auch unter Einbezug der Beobachtungen vom Gäbris verschiedene Sensitivitätsinversionen durchgeführt. Das heisst, es wurden dieselben Sensitivitätsinversionen mit hoher/tiefer Partikelstarthöhe und konstanten/saisonalen Emissionen sowie tiefen/hohen a-priori Emissionen durchgeführt. Insgesamt ergaben sich also erneut 8 Sensitivitätsinversionen.

Die Verwendung der Gäbris Daten in der Inversion führte zu klaren Unterschieden in der räumlichen Verteilung der a-posteriori Emissionen. Das in den bisherigen Inversionen aufgetretene Maximum in den a-posteriori Anpassungen in der Nordostschweiz konnte nicht bestätigt werden (Abbildung 42). Stattdessen wurde sogar eine Emissionsreduktion westlich vom Gäbris (St. Gallen/Thurgau) ermittelt und ein stärkerer Emissionsanstieg in Süddeutschland und in einer geringeren Masse in Graubünden diagnostiziert. An den für die Schweiz ermittelten Gesamtemissionen änderte der Einbezug der Gäbris Daten wenig. Diese blieben mit 191.6 Gg yr^{-1} praktisch unverändert. Allerdings reduzierte sich die a-posteriori Unsicherheit von 21.2 Gg yr^{-1} auf 18.7 Gg yr^{-1} . Im gleichen Masse reduzierte sich auch die mittlere analytische a-posteriori Unsicherheit von 10.0 zu 9.0 Gg yr^{-1} . Der Einfluss der Gäbris Daten auf die räumliche Verteilung der Unsicherheitsreduktion ist in Abbildung 43 dargestellt. Das Hinzufügen der Gäbris Daten resultierte insbesondere in der Region Thurgau und westliches St. Gallen in einer erhöhten Unsicherheitsreduktion, weniger hingegen in den Kantonen Appenzell.

In der Analyse der saisonalen Emissionen ist zu erkennen, dass die erwähnte Emissionsreduktion westlich von Gäbris besonders in den Sommermonaten stark ausgeprägt war, während in den Herbstmonaten grössere Unterschiede zur Standardinversion lediglich in nächster Nähe zum Standort Gäbris auftraten (Abbildung 44).

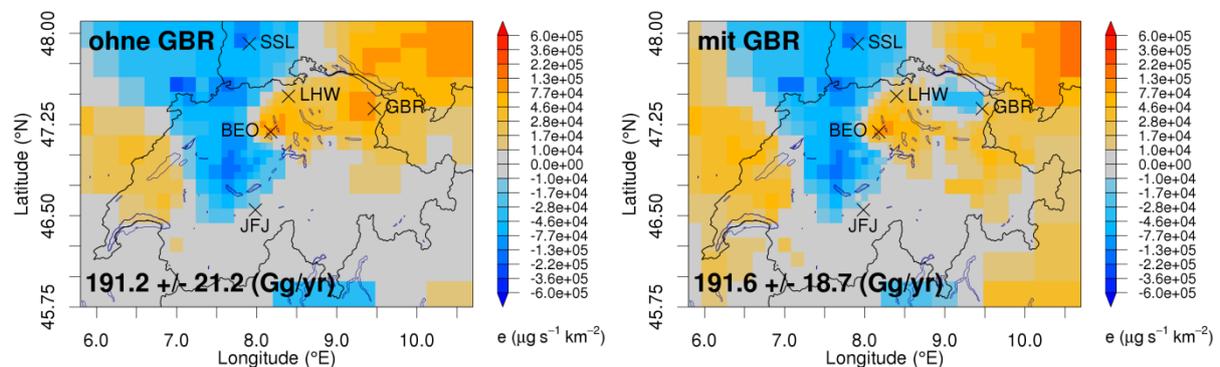


Abbildung 42: Mittlere Differenz zwischen a-posteriori und a-priori Emissionen für das Jahr 2016 (links) ohne Gäbris-Daten (vergleiche Abbildung 30) und (rechts) mit Gäbris-Daten.

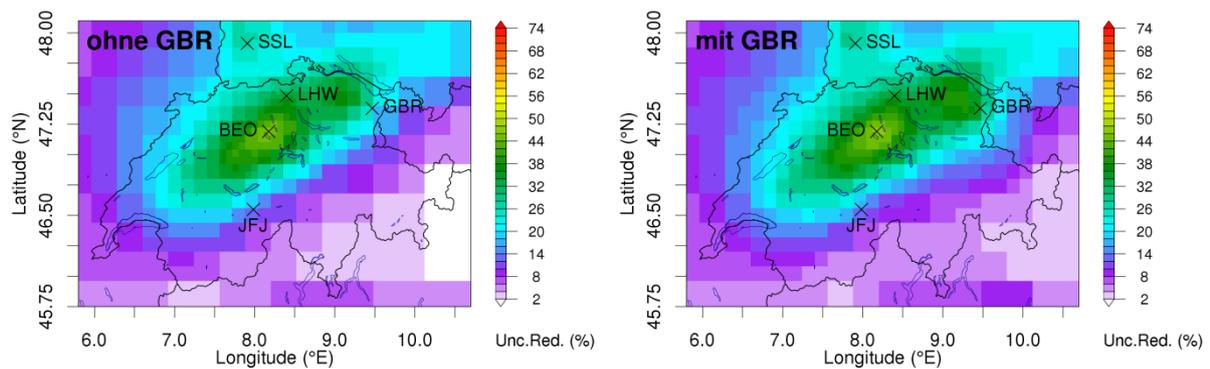


Abbildung 43: Mittlere Unsicherheitsreduktion zwischen a-posteriori und a-priori Emissionen für das Jahr 2016 (links) ohne Gäbris-Daten (vergleiche Abbildung 30) und (rechts) mit Gäbris-Daten.

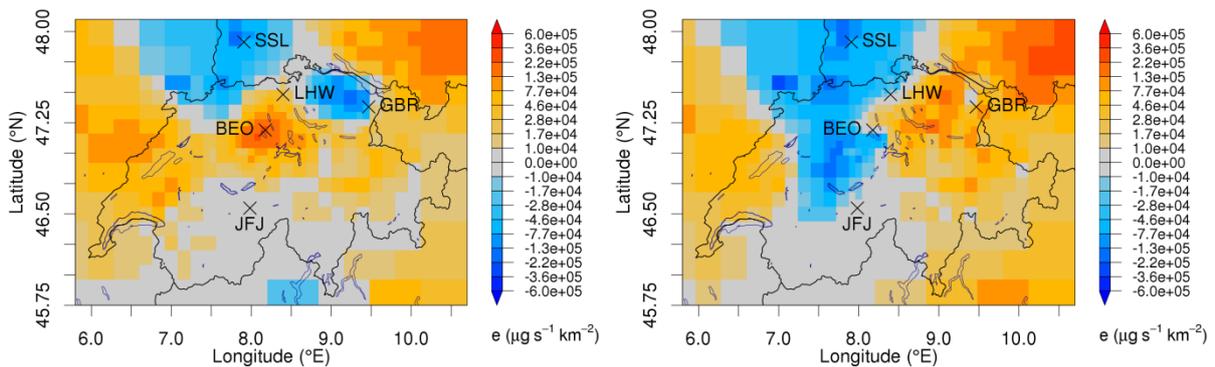


Abbildung 44: Mittlere Differenz zwischen a-posteriori und a-priori Emissionen für alle Inversionen mit Gäbris (links) Sommermonate, (rechts) Herbstmonate.

Grundsätzlich muss festgestellt werden, dass die Modelleistung für den Standort Gäbris auch für die a-posteriori Simulationen deutlich unter der für die anderen Standorte im Mittelland erreichten aber auch für die Bergstation Schauinsland zurück bleibt. In Abbildung 45 ist weiter zu erkennen, dass bei Verwendung der hohen Starthöhen am Gäbris der a-posteriori Taylor Skill Score sich kaum zwischen den Inversionen mit oder ohne Gäbris Daten unterscheidet, was erneut die Schwierigkeiten des Transportmodells mit diesem Standort bestätigt. Betrachtet man den Taylor Skill Score für das gesamte Methansignal, so lässt sich auch für die hohen Starthöhen am Gäbris eine Verbesserung erkennen, wenn die Messungen auch in der Inversion genutzt werden. Das bedeutet allerdings, dass diese Verbesserung nur aufgrund einer Anpassung der Basislinie zustande kommt. Zusätzlich wirkt sich der Einbezug der Gäbris Daten im Fall der hohen Starthöhen auch noch negativ auf die Modelleistung an den Standorten Beromünster und, in geringerem Masse, Lägern-Hochwacht aus. Für die niedrigen Partikelstarthöhen wirkte sich der Einbezug der Gäbris Daten allerdings positiv auf die Modelleistung aus. Dies war insbesondere der Fall am Gäbris selbst, während die Änderungen an den beiden anderen Standorten marginal waren.

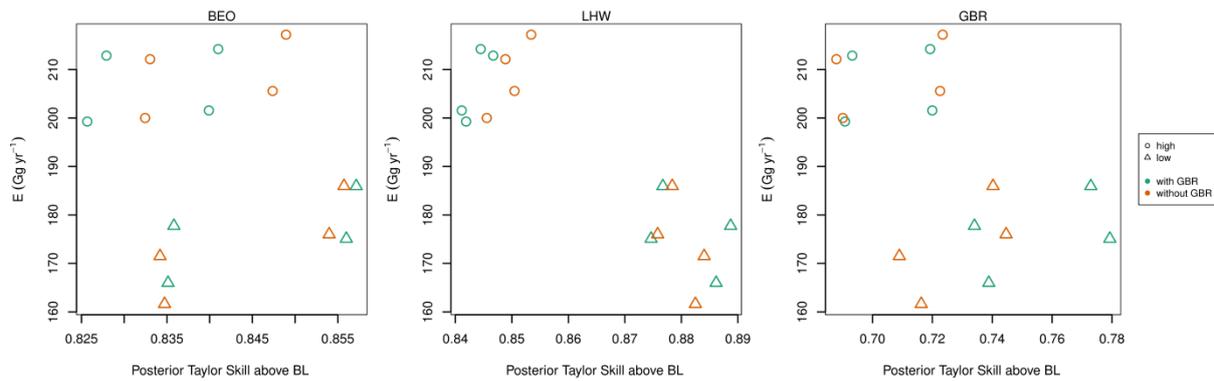


Abbildung 45: Zusammenhang zwischen Modellleistung (Taylor Skill Score oberhalb der Basislinie) und den totalen Schweizer Emissionen für Sensitivitätsinversionen mit und ohne Einbezug der Gäbris Daten für die Standorte (links) Beromünster, (Mitte) Lägern-Hochwacht und (rechts) Gäbris.

6 Schlussfolgerungen

Insgesamt bestätigen die in dieser Studie mit Hilfe der inversen Modellierung gewonnenen Schweizer Methanemissionen die Angaben im Schweizer Treibhausgasinventar (Tabelle 6). Dem Mittelwert der Inversion von $202 \pm 17 \text{ Gg yr}^{-1}$ für die Jahre 2013-2016 stehen mittlere Emissionen von $204 \pm 18 \text{ Gg yr}^{-1}$ im NIR für die Jahre 2013-2015 gegenüber ($205 \pm 14 \text{ Gg yr}^{-1}$ aus der inversen Modellierung für den gleichen Zeitraum). Im Vergleich zur Vorgängerstudie liegen die a-posteriori Werte der Inversion um ca. 6 Gg yr^{-1} höher. Dies ist weitestgehend auf die Verwendung eines zusätzlichen a-priori Wertes zurückzuführen, der um 20 Gg yr^{-1} höher liegt als der erste im letzten Bericht verwendete Wert, jedoch besser mit dem zuletzt rapportierten Inventarwert übereinstimmt. Wäre allein dieser Wert als a-priori verwendet worden, fiel das Ergebnis der Inversionen nochmals 6 Gg yr^{-1} höher aus. Dies zeigt eine gewisse Abhängigkeit des Resultats vom a-priori, allerdings liegt diese Abhängigkeit innerhalb der gegebenen Unsicherheiten und die a-posteriori Differenzen sind kleiner als die a-priori Differenzen. Letzteres ist erneut ein Zeichen dafür, dass die Inversion in der Lage ist, die a-priori Unsicherheit (hier direkt als Bandbreite der Gesamtemission eingegangen) zu verkleinern. Die Vorgängerstudie hatte bereits gezeigt, dass sehr ähnliche räumliche Verteilungen der a-posteriori Emissionen erzielt werden können, selbst wenn verschiedene a-priori Verteilungen verwendet wurden. Die aus der Inversion resultierenden Schwankungen im Untersuchungszeitraum sind wahrscheinlich eine direkte Manifestation der mit der Inversion verbundenen Unsicherheit und nicht durch echte Schwankungen der Methanemissionen erklärbar. Die in der Schweiz dominierenden Emissionsquellen sollten nach unserem Verständnis keine starken Schwankungen von Jahr zu Jahr aufweisen. Allenfalls bei der Hofdüngerbewirtschaftung könnte man sich Schwankungen aufgrund klimatologischer Effekte oder aufgrund von Bewirtschaftungsfaktoren vorstellen. Ob diese aber ausreichen, um die aus der Inversion gewonnene Bandbreite von 20 Gg yr^{-1} zu erklären, ist zweifelhaft. Auch ist es mit den Inversionsergebnissen bislang nicht möglich, den sehr kleinen Trend, der für den untersuchten Zeitraum im NIR angegeben ist, zu verifizieren. Erst wenn sich die Änderungen der Schweizer Emissionen im Bereich der von der Inversion erreichten Unsicherheit (17 Gg yr^{-1}) bewegen oder wenn Fortschritte bei der Transportmodellierung die Inversionsunsicherheit reduzieren, sollte dies möglich sein.

Neben dem Emissionstotal konnten auch die vormals gewonnen Ergebnisse bezüglich der räumlichen Verteilung der Emissionen weitgehend bestätigt werden. Es bleibt in allen Untersuchungsjahren bei einer gewissen Ost/West Teilung mit höheren (tieferen) a-posteriori Werten östlich (westlich) vom Standort Beromünster. Im Vergleich zur bisherigen Studie entfällt jedoch eine sekundäre Emissionsreduktion im Bereich Zürcher Unterland/Thurgau, und der Anstieg rund um den Standort Beromünster und direkt östlich davon ist deutlich ausgeprägter.

Tabelle 6: Übersicht der Schweizer Methanemissionen für die Jahre 2013 bis 2016. Alle Unsicherheiten bezeichnen 1- σ Konfidenzintervalle (FOEN, 2017).

CH₄ Emissionen	2013	2014	2015	2016*
Total (NIR 2017)	205±18	205±18	203±18	-
Total (Inversion)	199±17	204±11	213±14	191±21
Prozesse NIR				
1A Energie	4.5	3.7	3.7	-
1B Verdampfungsemissionen	8.0	7.9	7.8	-
2 Industrielle Prozesse	0.1	0.1	0.1	-
3A Nutztierhaltung	133.6	134.6	133.8	-
3B Hofdüngerbewirtschaftung	32.0	32.4	32.3	-
4 LULUCF	0.5	0.5	0.5	-
5A Deponie	15.3	14.7	14.0	-
5B Biogas- und Kompostierungsanlagen	4.2	4.3	4.4	-
5C Abfallverbrennung (ohne KVA)	0.2	0.2	0.2	-
5D Abwasserreinigung	6.8	7.0	7.1	-

*: Werte für 2016 werden erst 2018 rapportiert.

Weiterhin bestätigte sich die saisonale Variabilität in den Schweizer Methanemissionen, die bereits in der Vorgängerstudie gefunden wurde. Die Emissionen lagen jeweils für die Wintermonate niedriger als im Jahresdurchschnitt. Im Mittel über alle Jahre ergaben sich um 24 Gg yr⁻¹ geringere Winteremissionen. Nimmt man an, dass diese jahreszeitlichen Schwankungen allein auf die Reduktion der Hofdüngeremissionen (32 Gg yr⁻¹ laut NIR) zurückzuführen sind, ergäbe sich eine winterliche Reduktion dieser Emissionen um 75 % im Vergleich zum Jahresmittel. Allerdings ist auch bei den direkten Emissionen aus der Nutztierhaltung mit einer gewissen jahreszeitlichen Schwankung zu rechnen, da die Methanemissionen der Milchkuhe mit der Milchleistung korreliert sind und letztere wegen der typischen Laktationsperiode im Jahresverlauf (statistisch) nicht konstant ist. Für die Annahme, dass Hofdünger die Hauptrolle bei der Saisonalität spielt, spricht auch die Tatsache, dass die grössten Reduktionen in den landwirtschaftlichen Gebieten rund um Beromünster und westlich davon verortet werden. Für das Jahr 2016 ergaben sich sehr stark reduzierte winterliche Emissionen (~50 Gg yr⁻¹ unter dem Jahresdurchschnitt), die sich nicht allein aufgrund von Emissionsreduktionen aus der Hofdüngerbewirtschaftung erklären lassen. Es ist allerdings zu bemerken, dass die a-posteriori Unsicherheit für die Wintermonate 2016 relativ gross ist.

Die zusätzlichen Messungen in der Nordostschweiz (Gäbris) im Sommerhalbjahr 2016 konnten die aus den bisherigen Inversionen vermutete zusätzliche Quelle in dieser Region nicht bestätigen. Aus den Messungen konnte man keiner bestimmten Windrichtung besonders grosse Methanwerte zuordnen, was im Fall einer starken, räumlich begrenzten Quelle der Fall sein sollte. Festgestellt wurde lediglich eine generell positive Methanabweichung bei nördlicher Anströmung, die aber dem verstärkten Transport von verschmutzter Grenzschichtluft bei einer Anströmung aus Norden zugeordnet werden musste. Insgesamt führten die Inversionen mit Daten vom Gäbris zu sehr ähnlichen Totalemissionen für die Schweiz, zeigten jedoch eine weitere Verschiebung des vorher in der Nordostschweiz gefundenen Emissionsmaximums in den süddeutschen Raum. Dies könnte ein Hinweis auf dort oder weiter östlich im Europäischen TNO/MACCC Inventar tatsächlich fehlende Emissionen sein.

Ein entscheidender Einflussfaktor in den Inversionen ist die Behandlung des grossskaligen Konzentrationshintergrunds. Bisher wurde dieser aus den Messungen am Jungfrauoch als ein langsam variierender Hintergrund hergeleitet. Dieser könnte jedoch auch kurzfristigen Schwankungen unterworfen sein, etwa wenn die Herkunft der Luftmassen von Süd auf Nord oder von Ost auf West wechselt. Um diese Einflüsse zu untersuchen, wurden Sensitivitätsinversionen durchgeführt, in denen die Methanfelder von globalen Modellen als Randbedingungen verwendet wurden. Diese Sensitivitätsstudien zeigten, dass man solche Randbedingungen mit Vorsicht behandeln muss, da sie den tatsächlichen Hintergrund systematisch über- oder unterschätzen könnten. Nur wenn man der Inversion erlaubte, die

Randbedingungen als Teil des Zustandsvektors zu optimieren (wie das bereits für die JFJ-basierte Basislinie der Fall war), wurden ähnliche Resultate wie in den bisherigen Inversionen erzielt. Nichtsdestotrotz stellt die Verwendung von globalen Randbedingungen für die regionale Inversion einen klaren Vorteil gegenüber der Verwendung einer Hintergrundstation dar, da der Ansatz physikalisch konsistenter ist und in anderen Regionen nicht immer eine Hintergrundstation verfügbar ist.

Die Ergebnisse mit und ohne Gäbris und mit und ohne Verwendung globaler Modelle zeigen, dass das Schweizer Emissionstotal mit den beiden Mittellandstandorten Beromünster und Lägern-Hochwacht insgesamt robust bestimmt werden kann. Die exakte räumliche Zuordnung der Emissionen stellt allerdings eine grosse Herausforderung dar, sodass die erhaltenen Muster mit Vorsicht interpretiert werden sollten. Der Einbezug weiterer europäischer Messungen oder weiterer Stationen im westlichen und östlichen Mittelland könnte helfen, die räumliche Zuordnung in Zukunft zu verbessern.

Trotz der im Projekt am FLEXPART-COSMO Modell vorgenommenen Anpassungen (mittlere Windfelder, Verbesserung der Transportbeschreibung) musste festgestellt werden, dass ein Antrieb der Simulationen mit hochaufgelösten Windfeldern der COSMO-2 und COSMO-1 Modelle der MeteoSCHWEIZ (2 km bzw. 1 km Auflösung) nach wie vor zu einer viel zu starken Mischung führt. FLEXPART-COSMO Methansimulationen für den Standort Gäbris mit COSMO-1 Eingabefeldern zeigten zwar gewisse Verbesserungen bezüglich der Wiedergabe des gemessenen Tagesgangs, aber insgesamt wurden die gemessenen Konzentrationen stark unterschätzt. Zukünftige Inversionen würden von einer verbesserten Transportmodellierung profitieren. Dies gilt nicht nur für die Verwendung von Messungen an Bergstationen sondern generell, da letztlich die Topographie im gesamten Modellgebiet als komplex angesehen werden muss.

7 Ausblick

Die auf die Vorgängerstudie basierende Publikation (Henne et al., 2016) ist international auf grosses Interesse gestossen (e.g., WMO, 2016) und im Rahmen der WMO IG³IS Initiative werden zur Zeit für mehrere Länder ähnliche Pilotprojekte vorbereitet, die bei der Validierung ihrer Treibhausgasflüsse helfen sollen. Die Empa führt zur Zeit eine vom BAFU finanzierte Studie zur Validierung der Schweizer Lachgasemissionen durch, die sich an den hier vorgestellten Methoden orientiert und wofür im Januar 2017 kontinuierliche Messungen am Standort Beromünster gestartet wurden. Allerdings stellen Lachgasemissionen aufgrund ihrer hohen zeitlichen Variabilität eine viel grössere Herausforderung dar. Es wird wahrscheinlich notwendig sein, anstatt der räumlichen Verteilung der Emissionen deren zeitlichen Verlauf aufgeschlüsselt nach Emissionskategorien und einigen wenigen Regionen zu bestimmen. Ein ähnliches Vorgehen könnte auch für Methanemissionen eingesetzt werden, wobei es schwierig sein dürfte, unabhängige Informationen für verschiedene Kategorien zu gewinnen, da die Schweizer Emissionen stark durch die Nutztierhaltung und Hofdüngerbewirtschaftung dominiert werden. Andererseits wäre es möglich, aus dem vorhandenen Inventar zeitlich variable Emissionsfelder zu generieren und sich so Informationen der jahreszeitlich schwankenden Emissionsverhältnisse zwischen den Kategorien zu Nutzen zu machen. Eine weitere Möglichkeit für die Quellunterscheidung stellen kontinuierliche Messungen der atmosphärischen Methanisotope (¹³CH₄ und CH₃D) dar. Damit liessen sich auch auf der regionalen Skala insbesondere fossile von mikrobiellen Quellen unterscheiden (Röckmann et al., 2016).

Neben Lachgas und Methan sollen in nächster Zeit auch halogenierte Klimagase an der Station Beromünster gemessen werden (SNF Antrag). Diese Messungen würden es erlauben, auch deren Schweizer Emissionen explizit mit der hier beschriebenen Inversionsmethodik zu quantifizieren und mit den bislang im Projekt HALCLIM aus Daten vom Jungfraujoch gewonnenen Emissionsabschätzungen zu vergleichen.

Für all diese Studien wird es wichtig sein, das hier verwendete Transportmodell weiter zu entwickeln. Wie oben beschrieben, ist es im Rahmen dieses Projekts nicht gelungen, das Problem zu starker Verdünnung in FLEXPART-COSMO bei Verwendung von Eingabedaten mit 2 km oder 1 km horizontaler Auflösung zu beheben. Weder die Verwendung von mittleren Modellfeldern noch Verbesserungen in der Transportbeschreibung konnten Abhilfe schaffen. Ein direkter Vergleich von Eulerschen Transportsimulationen mit COSMO und Lagrange'schen Simulationen mit FLEXPART-COSMO soll helfen, diesem Problem weiter nachzugehen. Die Ursachen könnten in der von der MeteoSCHWEIZ verwendeten Einstellung des COSMO Modells liegen. Es wäre wünschenswert, diese in Zusammenarbeit mit der

MeteoSchweiz zu überprüfen und mögliche Verbesserungen in das operationelle COSMO System zu übernehmen, sofern diese die Qualität der Wettervorhersagen nicht kompromittieren.

Um auch in Zukunft die Methanemissionen der Schweiz unabhängig validieren zu können, wird die Kontinuität in den atmosphärischen Messungen essentiell sein. Wie oben gesehen, ist das Inversionsergebnis nicht ganz unabhängig von der Auswahl der atmosphärischen Messungen, da einerseits der vorhandene Informationsgehalt aus den Beobachtungen nicht mehr die gleichen Randbedingungen für die Inversionsrechnung liefert, andererseits aber auch jede Simulation für einen anderen Standort andere systematische Fehler enthalten könnte. Ein Unterbruch oder auch eine Verschiebung an einen anderen Standort birgt deshalb die Gefahr von systematischen Brüchen in den Ergebnissen.

Die Empa engagiert sich auch international in verschiedenen bereits finanzierten und geplanten Projekten, deren Ziel es ist, die Qualität der inversen Ansätze zu verbessern und die Methoden zu harmonisieren. Beispiele sind das MEMO2-Projekt (<http://h2020-memo2.eu/>) zur Untersuchung europäischer Methanquellen, das europäische Integrated Carbon Observation System (<https://www.icos-ri.eu/>), das IG³IS Programm der WMO (<http://www.wmo.int/pages/prog/arep/gaw/ghg/IG3IS-info.html>) sowie weitere geplante Projekte im Rahmen von Horizon 2020. Die hier entwickelten Methoden werden in diese Projekte einfließen und umgekehrt wird die Zusammenarbeit in den internationalen Projekten helfen, die Emissionsabschätzungen für klimawirksame Gase in der Schweiz weiter zu verbessern.

Danksagungen

Der Gemeinde Gais (AR) und speziell Herrn Lussmann möchten wir für die unbürokratische Unterstützung der Messungen am Sendemast Gäbris danken. Für die Unterstützung bei der Einrichtung der Station werden auch Martin K. Vollmer und Simon Wyss herzlichst verdankt. Ein besonderer Dank gilt den Partnern im SNF-Sinergia Projekt CarboCount-CH für den Betrieb der Messstationen, insbesondere Markus Leuenberger und Rüdiger Schanda (Universität Bern) für die Stationen Beromünster und Gimmiz und Werner Eugster (ETH Zürich) für die Station Frübüel. Wir danken ferner der Stiftung Hochalpiner Forschungsstationen Jungfrauoch und Gornergrat (HFSJG) für den Zugang zu den Einrichtungen auf dem Jungfrauoch. Auch das Deutsche Umweltbundesamt (UBA) und Frank Meinhardt seien an dieser Stelle für die Bereitstellung der Methanmessreihe der Station Schauinsland dankend erwähnt. Meteorologische Daten der Stationen Lägern-Hochwacht und Gäbris wurden von MeteoSchweiz bzw. MeteoGroup zur Verfügung gestellt.

Referenzen

- 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., and Gerbig, C.: Atmospheric CH₄ in the first decade of the 21st century: Inverse modeling analysis using SCIAMACHY satellite retrievals and NOAA surface measurements, *J. Geophys. Res.*, **118**, 7350-7369, doi: 10.1002/jgrd.50480, 2013.
- Berhanu, T. A., Satar, E., Schanda, R., Nyfeler, P., Moret, H., Brunner, D., Oney, B., and Leuenberger, M.: Measurements of greenhouse gases at Beromünster tall tower station in Switzerland, *Atmos. Meas. Tech. Discuss.*, **8**, 10793-10822, doi: 10.5194/amtd-8-10793-2015, 2015.
- Brioude, J., Angevine, W. M., McKeen, S. A., and Hsie, E. Y.: Numerical uncertainty at mesoscale in a Lagrangian model in complex terrain, *Geosci Model Dev*, **5**, 1127-1136, doi: 10.5194/gmd-5-1127-2012, 2012.
- Dlugokencky, E. J., Myers, R. C., Lang, P. M., Masarie, K. A., Crotwell, A. M., Thoning, K. W., Hall, B. D., Elkins, J. W., and Steele, L. P.: Conversion of NOAA atmospheric dry air CH₄ mole fractions to a gravimetrically prepared standard scale, *J. Geophys. Res.*, **110**, D18306, doi: 10.1029/2005JD006035, 2005.
- FOEN: Switzerland's greenhouse gas inventory 1990-2015, Submission of April 2017 under the United Nations Framework Convention on Climate Change and under the Kyoto Protocol, Federal Office for the Environment (FOEN), Bern, 2017.
- Henne, S., Schnadt Poberaj, C., Reimann, S., and Brunner, D.: Global-scale tropospheric Lagrangian particle models with linear chemistry, in: *Lagrangian Modeling of the Atmosphere*, edited by: Lin, J. C., Gerbig, C., Brunner, D., Stohl, A., Luhar, A., and Webley, P., *Geophysical Monographs*, AGU, Washington, DC, 235-250, 2013.
- Henne, S., Brunner, D., Steinbacher, M., and Emmenegger, L.: Verifikation des Schweizer Methan-Emissionsinventars mit Hilfe der Messungen aus dem Projekt CarboCount CH, *Empa/BAFU, Dübendorf/Bern, Switzerland*, **42**, 2015.
- Henne, S., Brunner, D., Oney, B., Leuenberger, M., Eugster, W., Bamberger, I., Meinhardt, F., Steinbacher, M., and Emmenegger, L.: Validation of the Swiss methane emission inventory by atmospheric observations and inverse modelling, *Atmos. Chem. Phys.*, **16**, 3683-3710, doi: 10.5194/acp-16-3683-2016, 2016.
- Hiller, R. V., Bretscher, D., DelSontro, T., Diem, T., Eugster, W., Henneberger, R., Hobi, S., Hodson, E., Imer, D., Kreuzer, M., Künzle, T., Merbold, L., Niklaus, P. A., Rihm, B., Schellenberger, A., Schroth, M. H., Schubert, C. J., Siegrist, H., Stieger, J., Buchmann, N., and Brunner, D.: Anthropogenic and natural methane fluxes in Switzerland synthesized within a spatially explicit inventory, *Biogeosciences*, **11**, 1941-1959, doi: 10.5194/bg-11-1941-2014, 2014.
- Kuener, J. J. P., Visschedijk, A. J. H., Jozwicka, M., and Denier van der Gon, H. A. C.: TNO-MACC_II emission inventory; a multi-year (2003 - 2009) consistent high-resolution European emission inventory for air quality modelling, *Atmos. Chem. Phys.*, **14**, 10963-10976, doi: 10.5194/acp-14-10963-2014, 2014.
- Oney, B., Henne, S., Gruber, N., Leuenberger, M., Bamberger, I., Eugster, W., and Brunner, D.: The CarboCount CH sites: characterization of a dense greenhouse gas observation network, *Atmos. Chem. Phys.*, **15**, 11147-11164, doi: 10.5194/acp-15-11147-2015, 2015.
- Röckmann, T., Eyer, S., van der Veen, C., Popa, M. E., Tuzson, B., Monteil, G., Houweling, S., Harris, E., Brunner, D., Fischer, H., Zazzeri, G., Lowry, D., Nisbet, E. G., Brand, W. A., Necki, J. M., Emmenegger, L., and Mohn, J.: In situ observations of the isotopic composition of methane at the Cabauw tall tower site, *Atmos. Chem. Phys.*, **16**, 10469-10487, doi: 10.5194/acp-16-10469-2016, 2016.

- Ruckstuhl, A. F., Henne, S., Reimann, S., Steinbacher, M., Vollmer, M. K., O'Doherty, S., Buchmann, B., and Hueglin, C.: Robust extraction of baseline signal of atmospheric trace species using local regression, *Atmos. Meas. Tech.*, 5, 2613-2624, doi: 10.5194/amt-5-2613-2012, 2012.
- Seibert, P., and Frank, A.: Source-receptor matrix calculation with a Lagrangian particle dispersion model in backward mode, *Atmos. Chem. Phys.*, 4, 51-63, doi: 10.5194/acp-4-51-2004, 2004.
- Stohl, A., Forster, C., Frank, A., Seibert, P., and Wotawa, G.: Technical note: The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 6.2, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 2461-2474, doi: 10.5194/acp-5-2461-2005, 2005.
- Taylor, K. E.: Summarizing multiple aspects of model performance in a single diagram., *J. Geophys. Res.*, 106, 7183-7192, 2001.
- WMO: WMO GREENHOUSE GAS BULLETIN, WMO, Geneva, Switzerland, ISSN 2078-0796, 8, 2016.
- Zhao, C. L., and Tans, P. P.: Estimating uncertainty of the WMO mole fraction scale for carbon dioxide in air, *J. Geophys. Res.*, 111, D08S09, doi: 10.1029/2005JD006003, 2006.

Glossar

CRDS	C avity R ing D own S pektrometer
COSMO	C onsortium for S mall scale M odelling: Das Wettervorhersagemodell der Meteo Schweiz
COSMO7	Die operationelle Modellanalyse der Meteo Schweiz mit einer horizontalen Auflösung von 7 km x 7 km
COSMO2	Die operationelle Modellanalyse der Meteo Schweiz mit einer horizontalen Auflösung von 2 km x 2 km
COSMO1	Die operationelle Modellanalyse der Meteo Schweiz mit einer horizontalen Auflösung von 1 km x 1 km
ECMWF	E uropean C entre for M edium-Range W eather F orecasts
EMEP	E uropean M onitoring and E valuation P rogramme
FLEXPART	Lagrang'sches Partikelausbreitungsmodell, betrieben mit ECMWF Modelldaten
FLEXPART-COSMO	Lagrang'sches Partikelausbreitungsmodell, betrieben mit COSMO Modelldaten
GAW	G lobal A tmosphere W atch
GC-MS	G aschromatographie – M assenspektrometrie zur Messung von Spurengasen.
IPCC	I nternational P anel for C limate C hange
JFJ	J ungfrau j och Observatorium.
LPDM	L angrangian P article D ispersion M odel. Bezeichnet eine Klasse von Modellen, die neben advektivem auch turbulenten und (meist) konvektiven Transport simulieren.
MAIOLICA	Hier das aus dem CCES-Projekt MAIOLICA hervorgegangene, räumlich aufgelöste CH ₄ Emissionsinventar
NIR	N ational I nventory R eporting
NOAA	N ational O ceanic and A tmospheric A dministration.
NWP	Numerische Wettervorhersage
ppbv	p arts p er b illion per volume. Anzahl Moleküle in 10 ⁹ Molekülen. Die atmosphärische Konzentration der Spurengase wird oft als trockene molare Anteile (dry air mole fraction) angegeben. Oft werden synonym zu Trockenmolfraktion die Begriffe Konzentration oder Mischungsverhältnis (mixing ratio) verwendet.
ppmv	p arts p er m illion per volume. Sinngemäss zu ppbv, aber 3 Grössenordnungen grösser (Anteil in 10 ⁻⁶).
RMSE	Wurzel des mittleren quadratischen Fehlers (R oot M ean S quare E rror)
SGHGI	S wiss G reenhouse G as I nventory
STHGI	S chweizer T reibhaus g as I nventar
TNO/MACC	Europäisches Emissionsinventar erstellt von TNO (Niederlande) für das EU Projekt MACC
UNFCCC	U nited N ations F ramework C onvention on C limate C hange
WMO	W orld M eteorological O rganization