

Empa Projekt-Nr: 5211.00173.100.01

# Verifikation des Schweizer Methan-Emissionsinventars

mit Hilfe der Messungen aus dem Projekt CarboCount CH

Abschlussbericht

Mai 2015



Räumliche Verteilung der Schweizer Methan-Emissionen wie aus Messungen ermittelt (Basis-Inversion, links) und räumliche Verteilung der Differenzen zum bestehenden Inventar (rechts). Messstandorte sind mit Kreuzen und Stationskürzel gekennzeichnet

# Abteilung Luftfremdstoffe/Umwelttechnik, Empa, 8600 Dübendorf

Stephan Henne, Dominik Brunner, Martin Steinbacher, 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, Paul Filliger, 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.

1	Zusammenfassungen	4
1.1	Zusammenfassung	4
1.2	Summary	5
2	Projektziele/Ausgangslage	6
3	Methoden	6
3.1	Messungen von Methan in der Schweiz und benachbartem Ausland	6 7
	3.1.2       Lagern Hochwacht         3.1.3       Früebüel         3.1.4       Gimmiz         3.1.5       Jungfraujoch	8 
	3.1.6 Schauinsland	
3.2 3.3	Iransportsimulationen         Inversionssysteme         3.3.1       Bayesische Inversion         3.3.2       Kalman-Filter Inversion         2.3.3       Konstruktion der Feblerkoveringen	10 11 12 13
4	5.5.5 Konstruktion der Penierkovananzen	
4.1 4.2	Tagesgänge Regressionsanalyse	17 18
4.1 4.2 4.3	Tagesgänge Regressionsanalyse Datenfilterung für Emissions-Inversion	17 18 21
4.1 4.2 4.3 5	Tagesgänge Regressionsanalyse Datenfilterung für Emissions-Inversion Abschätzung der Schweizer Methanemissionen mit Inversionsrechnungen	17 18 21 <b>22</b>
4.1 4.2 4.3 5 5.1	Tagesgänge         Regressionsanalyse         Datenfilterung für Emissions-Inversion         Abschätzung der Schweizer Methanemissionen mit Inversionsrechnungen         Basis-Inversion         Scienzelisät den Emissionen	
4.1 4.2 4.3 5 5.1 5.2 5.3	Tagesgänge Regressionsanalyse Datenfilterung für Emissions-Inversion Abschätzung der Schweizer Methanemissionen mit Inversionsrechnungen Basis-Inversion Saisonalität der Emissionen Sensitivität gegenüber gewählten Beobachtungsdaten	
<ul> <li>4.1</li> <li>4.2</li> <li>4.3</li> <li>5</li> <li>5.1</li> <li>5.2</li> <li>5.3</li> <li>5.4</li> </ul>	Tagesgänge         Regressionsanalyse         Datenfilterung für Emissions-Inversion         Abschätzung der Schweizer Methanemissionen mit Inversionsrechnungen         Basis-Inversion         Saisonalität der Emissionen         Sensitivität gegenüber gewählten Beobachtungsdaten         Sensitivität gegenüber den gewählten a-priori Emissionen	
4.1 4.2 4.3 5 5.1 5.2 5.3 5.4 5.5	Tagesgänge         Regressionsanalyse         Datenfilterung für Emissions-Inversion         Abschätzung der Schweizer Methanemissionen mit Inversionsrechnungen         Basis-Inversion         Saisonalität der Emissionen         Sensitivität gegenüber gewählten Beobachtungsdaten         Sensitivität gegenüber den gewählten a-priori Emissionen         Sensitivität gegenüber Basiskonzentrationsbehandlung	
4.1 4.2 4.3 5 5.1 5.2 5.3 5.4 5.5 5.6 5.6	Tagesgänge	
4.1 4.2 4.3 <b>5</b> 5.1 5.2 5.3 5.4 5.5 5.6 5.7 5.8	Tagesgänge	
4.1 4.2 4.3 5 5.1 5.2 5.3 5.4 5.5 5.6 5.7 5.8 <b>6</b>	Tagesgänge         Regressionsanalyse         Datenfilterung für Emissions-Inversion         Abschätzung der Schweizer Methanemissionen mit Inversionsrechnungen         Basis-Inversion         Saisonalität der Emissionen         Sensitivität gegenüber gewählten Beobachtungsdaten         Sensitivität gegenüber den gewählten a-priori Emissionen         Sensitivität gegenüber Basiskonzentrationsbehandlung         Sensitivität gegenüber gewählter Kovarianzstruktur         Sensitivität gegenüber Transportmodell und Inversionsmethode         Kohlenstoffmonoxid Inversion         Schlussfolgerungen und Vergleich mit Schweizer Treibhausgasinventar	
4.1 4.2 4.3 5 5.1 5.2 5.3 5.4 5.5 5.6 5.7 5.8 6 7	Tagesgänge         Regressionsanalyse         Datenfilterung für Emissions-Inversion         Abschätzung der Schweizer Methanemissionen mit Inversionsrechnungen         Basis-Inversion         Saisonalität der Emissionen         Sensitivität gegenüber gewählten Beobachtungsdaten         Sensitivität gegenüber den gewählten a-priori Emissionen         Sensitivität gegenüber Basiskonzentrationsbehandlung         Sensitivität gegenüber gewählter Kovarianzstruktur         Sensitivität gegenüber Transportmodell und Inversionsmethode         Kohlenstoffmonoxid Inversion         Schlussfolgerungen und Vergleich mit Schweizer Treibhausgasinventar	
4.1 4.2 4.3 5 5.1 5.2 5.3 5.4 5.5 5.6 5.7 5.8 6 7 Dan	Tagesgänge	
4.1 4.2 4.3 5 5.1 5.2 5.3 5.4 5.5 5.6 5.7 5.8 6 7 Dan Refe	Tagesgänge         Regressionsanalyse         Datenfilterung für Emissions-Inversion         Abschätzung der Schweizer Methanemissionen mit Inversionsrechnungen         Basis-Inversion         Saisonalität der Emissionen.         Sensitivität gegenüber gewählten Beobachtungsdaten         Sensitivität gegenüber den gewählten a-priori Emissionen         Sensitivität gegenüber Basiskonzentrationsbehandlung         Sensitivität gegenüber gewählter Kovarianzstruktur         Sensitivität gegenüber Transportmodell und Inversionsmethode         Kohlenstoffmonoxid Inversion         Schlussfolgerungen und Vergleich mit Schweizer Treibhausgasinventar         Ausblick	

# 1 Zusammenfassungen

# 1.1 Zusammenfassung

Für die Erstellung des Schweizer Treibhausgasinventars (STHGI) schätzt das Schweizer Bundesamt für Umwelt (BAFU) jährlich die anthropogenen Emissionen der wichtigsten Treibhausgase aus Aktivitätsdaten und zugeordneten Emissionsfaktoren ab. Dabei können insbesondere für Methan (CH<sub>4</sub>), dem zweitwichtigsten anthropogenen Treibhausgas, einzelne Emissionsfaktoren grosse Unsicherheiten enthalten, die sich zu einer Gesamtunsicherheit der Schweizer CH<sub>4</sub> Emissionen von  $\pm 16$  % summieren. Unabhängige Messungen von CH<sub>4</sub> in der Atmosphäre können helfen, die Angaben des STHGI zu überprüfen. Dazu wurden in dieser Studie die kontinuierlichen Methanmessungen an vier Standorten des CarboCount-CH Messnetzes im Schweizer Mittelland (http://www.carbocount.ch) sowie an zwei weitere Stationen für den Zeitraum März 2013 bis Februar 2014 herangezogen. Kombiniert wurden diese Messungen mit Simulationen des atmosphärischen Transports und einem inversen Modellsystem, um daraus die räumliche Verteilung der Methanemissionen in der Schweiz und im benachbarten Ausland optimal zu bestimmen und die erhaltenen Ergebnisse mit denen des Treibhausgasinventars zu vergleichen. Als Ausgangspunkt (a-priori Information) für die Inversionsrechnungen dienten dabei sowohl das im Rahmen des Projektes MAIOLICA entwickelte, räumlich explizite Methan-Emissionsinventar (Hiller et al. 2014), das mit den Totalen des 2013 rapportierten STHGI für das Jahr 2011 kompatibel ist (FOEN, 2013) als auch weitere Europäische Inventare, die teilweise in Verteilung und Emissionstotal erheblich von denen in Hiller et al. (2014) abweichen.

Insgesamt wurden 32 verschiedene Inversionsrechnungen durchgeführt. Dabei wurden sowohl wichtige Sensitivitäten des Inversionssystems bezüglich des a-priori Inventars, der Hintergrundsbehandlung und der Unsicherheitsstruktur charakterisiert als auch das verwendete Transportmodell sowie der Inversionsalgorithmus (Bayesische und Kalman Filter) variiert. Zusammenfassend ergaben diese Sensitivitätsläufe gesamtschweizerische Emissionen von 200±20 Gg/yr. Dieser Wert liegt leicht höher als der des STHGI, wie es 2013 für das Jahr 2011 rapportiert wurde (178±28 Gg/yr), stimmt aber sehr gut mit dem Wert von 206±33 Gg/yr für das Jahr 2013 überein, der in der revidierten Version von 2015 genannt wird (FOEN, 2015a). Die Gesamtunsicherheit konnte im Vergleich zum a-priori Inventar reduziert werden. Ein Vergleich zwischen Inversionen mit verschiedenen a-priori Inventaren bestätigte die Resultate und demonstriert den unabhängigen Charakter dieser Emissionsbestimmung (geringer Einfluss des a-priori Inventars).

Die im MAIOLICA-Inventar vorgegebene räumliche Verteilung mit hohen Emissionen in den landwirtschaftlich dominierten Regionen und eher geringen Emissionen in den Ballungsräumen konnte ebenfalls weitgehend bestätigt werden. Dennoch ergaben sich gewisse räumliche Differenzen, die auf mögliche Inkonsistenzen hinweisen und weiter untersucht werden sollten. Insgesamt wurden aus der Inversion für landwirtschaftlich geprägte Regionen geringere Emissionen als bei Hiller et al. (2014) ermittelt (insbesondere Kanton Luzern, Zürich Unterland und westliches Thurgau). Aus einer jahreszeitlichen Analyse geht hervor, dass diese geringeren Emissionen hauptsächlich auf die Wintermonate fallen. Reduzierte winterliche Emissionen aus der Hofdüngerbewirtschaftung aufgrund kühlerer Temperaturen scheinen der wahrscheinlichste Grund zu sein. Die Revision des STHGI von 2015 gibt, verglichen mit früheren Angaben, leicht gesteigerte Emissionen aus der Landwirtschaft an. Weitere Emissionsprozesse, die in der revidierten Fassung des Inventars höhere Werte aufweisen (Kompostierung, Biogasanlagen und Abwasserreinigung) konnten mit Hilfe der Inversion nicht eindeutig einer bestimmten Region zugewiesen werden. Gebiete mit im Vergleich zum a-priori erhöhten Emissionen wurden insbesondere im östlichen St. Gallen und Appenzell identifiziert (bis +50 %). Das Auftreten dieses Emissionsanstiegs in fast allen Sensitivitätsinversionen scheint ein Artefakt auszuschliessen. Allerdings war es nicht möglich, der genannten Region eindeutig eine potentielle Quelle zuzuweisen. Sowohl bekannte anthropogene als auch biogene Quellen zeigen dort keine besondere Häufung.

Die Messungen des CarboCount CH Messnetzes haben sich für eine unabhängige Überprüfung der Zahlen des STHGI als sehr wertvoll erwiesen. Es wäre erstrebenswert, die Analyse auf weitere Jahre auszudehnen, um die hier bestimmten Merkmale des Emissionsfelds weiter zu analysieren und mögliche zeitliche Emissionstrends festzustellen. Ein weiterer repräsentativer Messstandort in der Westschweiz könnte helfen, die räumliche Verteilung der Emissionen aber auch die Gesamtemissionen in Zukunft noch genauer einzugrenzen.

Dübendorf, Mai 2015 Der Projektleiter

Brunn

Dr. D. Brunner

Der Abteilungsleiter

1. Emmanga

Dr. L. Emmenegger

## 1.2 Summary

The Swiss Federal Office for the Environment (FOEN) estimates anthropogenic emissions of the most important greenhouse gases for the compilation in the Swiss greenhouse gas inventory (SGHGI) mostly using information on activity data and associated emission factors. Especially for methane (CH<sub>4</sub>), the second most important anthropogenic greenhouse gas, some of the emission factors are associated with relatively large uncertainties, which results in an uncertainty estimate of the total Swiss CH<sub>4</sub> emissions of  $\pm 16$  %. Independent atmospheric observations of CH<sub>4</sub> can be used to validate the process based SGHGI. With this aim in mind, the current study utilised continuous CH<sub>4</sub> observations originating from the four sites of the CarboCount CH network on the Swiss Plateau (<u>http://www.carbocount.ch</u>) and two additional sites for the period March 2013 to February 2014. These observations were combined with atmospheric transport simulations and an inverse modelling framework in order to deduce the spatial distribution of CH<sub>4</sub> Emissions in Switzerland and the adjacent countries. Results were then compared to the estimates of the SGHGI. As prior information for the inversion calculation the spatially resolved Swiss CH<sub>4</sub> inventory, as established during the project MAIOLICA (Hiller et al. 2014) was used. The inventory is based on the 2013 reporting of FOEN for the year 2011 (FOEN, 2013). The independency of the inversion system was tested through the use of different, European scale prior inventories that differ considerably in magnitude and distribution from the one given by Hiller et al. (2014).

In total 32 sensitivity inversions were carried out to characterise the sensitivities of the inversion system with respect to prior emissions, treatment of background concentrations and covariance structures. Furthermore, the influence of the chosen transport model and inversion method (Bayesian vs. extended Kalman filter) was tested. In summary, total Swiss Emissions were estimated to 200±20 Gg/yr as mean and standard deviation of all sensitivity inversions. This value is considerably larger than the one given in the SGHGI (2013 submission) for the year 2011 (178±28 Gg/yr), but is in very good agreement with the value of 206±33 Gg/yr given in the revised 2015 submission for the year 2013 (FOEN, 2015a). The total uncertainty estimate of the posterior emissions could be reduced compared to the prior inventory. A comparison of the inversion results for different prior emissions confirms the robustness of the results and the independent character of the emission estimation by inverse methods.

The spatial distribution of the Swiss  $CH_4$  emissions as detailed in the MAIOLICA inventory and characterised by high emissions in regions dominated by agricultural activities and rather low emissions in the densely populated areas was largely confirmed in this study. However, some considerable spatial differences were detected that could point towards inconsistencies in the SGHGI and should be further investigated. Overall we deduced lower emissions from regions dominated by agricultural activities than Hiller et al. (2014), especially in the Cantons of Lucerne, northern Zurich, and western Thurgau. Analysing the emissions by season revealed that emissions were especially reduced during the winter months, which might lead to the conclusion that especially lower emissions from manure management might be responsible for the overall decrease, since the latter show a pronounced wintertime minimum due to reduced temperatures. In contrast, agricultural emissions were corrected upwards from the 2014 submission of the SGHGI to the 2015 submission. Other emission processes that increased according to the 2015 submission (composting, fermentation and waste water handling) could not be spatially located by the inversion. Next to the regions with reduced posterior values, increased  $CH_4$ emissions were deduced for the eastern part of Canton St. Gallen and the Cantons of Appenzell, where increases were up to 50% as compared to the prior estimate. This emission increase was common to most sensitivity inversions, which seems to rule out an artefact of the inversion system. However, it was not possible to assign a single potential source to the region. Both anthropogenic and biogenic source types don't exhibit a special cumulation in the given area.

The observations of the CarboCount CH network proved as an invaluable and independent source of information for the validation of the SGHGI. It would be worthwhile to extend the current analysis to further years, especially to corroborate the findings on the spatial emission distribution and to detect possible temporal emission trends. An additional representative observational site in western Switzerland could be useful to further improve the localisation of the emissions but also to reduce the uncertainty of the total emission estimate.

# 2 Projektziele/Ausgangslage

Die Schweiz erstellt jährlich ein Treibhausgasinventar (Swiss Greenhouse Gas Inventory, SGHGI) nach den Richtlinien der Klimarahmenkonvention der UN (FOEN, 2014). In CO<sub>2</sub>-Äquivalenten gemessen tragen die Methanemissionen rund 7% zu den gesamtschweizerischen Treibhausgasemissionen bei (FOEN, 2014). Für das Jahr 2012 beliefen sich laut SGHGI die anthropogenen Methanemissionen auf 176 Gg/yr. Die Unsicherheiten im Methaninventar sind vergleichsweise gross (16 %), da diese Emissionen hauptsächlich durch mikrobielle Prozesse und diffuse Verluste entstehen, die nicht wie bei CO<sub>2</sub> durch Handelsstatistiken erfassbar sind, sondern aus einzelnen Quelluntersuchungen auf die Schweiz hochskaliert werden müssen. Im Rahmen des MAIOLICA-Synthese Projekts wurden die Schweizer Gesamtemissionen in ein räumlich explizites Inventar mit einer horizontalen Auflösung von 500 m x 500 m umgewandelt (Hiller et al., 2014). Zusätzlich wurden für dieses Inventar auch Beiträge aus natürlichen Quellen evaluiert. Allerdings war der Nettobeitrag aus natürlichen Quellen vergleichsweise gering, ~3 Gg/yr. Die Verfügbarkeit eines räumlich aufgelösten Inventars ermöglicht es, atmosphärische Konzentrationen von Methan mit einem atmosphärischen Transportmodell zu simulieren und mit Messungen in der Atmosphäre zu vergleichen.

Im Rahmen dieses Projektes sollen die Angaben des SGHGI mit Hilfe einer unabhängigen Methode überprüft werden. Dazu werden Messungen der atmosphärischen Methankonzentrationen an den vier Stationen des CarboCount-CH Messnetzes (<u>http://www.carbocount.ch</u>) und den Langzeit-Beobachtungsstationen Jungfraujoch und Schauinsland (Deutschland) verwendet und mit einer Transport- und inversen Emissionsmodellierung kombiniert. Insbesondere soll auch geprüft werden, in wieweit Unterschiede zwischen dem SGHGI und anderen Treibhausgasinventaren mit Hilfe der inversen Modellierung erklärt werden können.

# 3 Methoden

In diesem Abschnitt werden die drei Haupttechniken der vorliegenden Analyse vorgestellt. Einerseits werden die verwendeten Messstandorte und Messsysteme sowie das atmosphärische Transportmodell beschrieben. Andererseits werden die zwei Inversionssysteme beschrieben, die die Messungen und die Transportsimulationen optimal verknüpfen, um die Methanflüsse in der Schweiz und Zentraleuropa abzuschätzen.



# 3.1 Messungen von Methan in der Schweiz und benachbartem Ausland

Abbildung 1: Übersicht über das Messnetz von CarboCount CH mit den 4 Standorten Lägern-Hochwacht (seit August 2012), Beromünster (seit November 2012), Früebüel (seit November 2012) und Gimmiz (seit Februar 2013).

Im Rahmen des SNF Sinergia Projekts CarboCount-CH wurde ein Messnetz von 4 zusätzlichen atmosphärischen Treibhausgasmessungen in der Schweiz aufgebaut. Alle vier Stationen (Abbildung 1 und Tabelle 1) wurden mit PICARRO (Santa Clara, California, USA) "cavity ring-down" Spektrometern (CRDS) ausgerüstet, die parallel CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, H<sub>2</sub>O und (ausser Früebüel 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 Früebüel). Alle Messungen wurden laufend gegen internationale Standards kalibriert (WMO X2007 (Zhao and Tans, 2006) für CO<sub>2</sub>, WMO X2004 für CH<sub>4</sub> (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<sub>2</sub>, 0.5 ppbv für CH<sub>4</sub> und 2 ppbv für CO. Alle hier angegebenen CH<sub>4</sub> Werte repräsentieren Molfraktionen in trockener Luft. Eine genauere Beschreibung des Messnetzes findet sich bei Oney et al. (2015).

Zusätzlich zu den CarboCount-CH Messungen werden in dieser Studie noch die CH<sub>4</sub>-Messungen der GAW Stationen Jungfraujoch (Empa) und Schauinsland (Schwarzwald, UBA) herangezogen. Diese dienen einer besseren räumlichen Eingrenzung des Einflusses der CarboCount-CH Stationen auf das CH<sub>4</sub> Emissionsfeld innerhalb der Schweiz sowie im angrenzenden Ausland.

Als Analysezeitraum wurden die ersten an allen CarboCount-CH Stationen vollständig verfügbaren 12 Monate ausgewählt. Diese Periode umfasst die Messungen für die Monate März 2013 bis Februar 2014. Die ermittelte Emissionsabschätzung gilt für ebendiesen Zeitraum.

Nachfolgend werden die einzelnen Messstationen und deren relative Lage gegenüber lokalen Treibhausgasflüssen diskutiert.

#### 3.1.1 Beromünster

Die Messstation Beromünster wurde am ehemaligen Funkturm des Schweizer Landessenders Beromünster im Jahr 2012 von der Universität Bern eingerichtet. Der Turm verfügt über eine Gesamthöhe von 217 Metern mit Gaseinlässen und meteorologischen Instrumenten auf 5 verschiedenen Höhen über Grund (12, 45, 72, 132, 212 m).

Der Standort selbst befindet sich in einer ländlichen Umgebung im Kanton Luzern auf einer Höhe von 797 m ü.M. auf einem Bergrücken mit relativ moderater Hangneigung zwischen dem Sempachersee und dem Seetal (Abbildung 2). Die Talböden befinden sich auf einer Höhe von ca. 500 m ü.M.. Im COSMO7 Modell (siehe Abschnitt 3.2) wird die Topografie im Bereich der Station nur sehr grob wiedergegeben und die Höhe an der Station ist lediglich 615m (Tabelle 1). Die direkte Umgebung der Messstation weisst ein Mosaik von landwirtschaftlichen Nutzflächen auf (Acker- und Weideland). Ausserdem befindet sich südlich ein kleineres Waldstück auf etwa gleicher Höhe wie die Station. Diverse kleinere, landwirtschaftliche Betriebe befinden sich in direkter (< 1km) Nähe zum Standort, während sich die nächste geschlossene Siedlungsfläche ca. 2 km nördlich befindet (Beromünster, < 7000 Einwohner).



Abbildung 2: Umgebungskarten (ca. 5 km x 5 km) der Station Beromünster: 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.

#### 3.1.2 Lägern Hochwacht

Zusätzlich zu den bestehenden meteorologischen Beobachtungen (MeteoSchweiz) wurden am Standort Lägern-Hochwacht 2012 von der Empa Treibhausgasmessungen in Betrieb genommen. Die Station befindet sich annährend auf dem höchsten Punkt (840 m ü.M.) des ost-west orientierten Lägern Grats nördlich von Zürich und sollte als solche nicht mit der NABEL Station am Südhang der Lägern verwechselt werden. Das Gelände an der Station fällt sowohl nördlich als auch südlich des schmalen Grats auf Talhöhen von ca. 450 m ü.M. steil ab, während der Grat sich ca. 10 km in Ost-West-Richtung mit Höhen um die 800 m ausdehnt. Der Bewuchs um die Station besteht vorwiegend aus Laubbäumen, wobei sich im östlichen Teil der Lägern auch immergrüne Nadelhölzer finden. Die Kronenhöhe in Nähe des Standorts ist ca. 20 m, während sich der Gaseinlass und die meteorologischen Beobachtungen in 32 m Höhe über Grund befinden. Die nächst gelegen landwirtschaftlichen Betriebe befinden sich in lediglich 500 m Entfernung zur Station, allerdings liegen diese bereits rund 150 m tiefer als die Station selbst. Die nächst gelegene Ortschaft (Boppelsen) ist ebenfalls nur 1.5 km entfernt, liegt aber bereits 300 m tiefer als die Station, so dass ein direkter Einfluss auf die Treibhausgasmessung als klein eingeschätzt werden kann. Im COSMO7 Modell wird die Lägern praktisch überhaupt nicht abgebildet. Die Umgebung ist flach mit einer Höhe von ca. 490 m ü.M. Die Konsequenzen für die Transportsimulationen werden in Abschnitt 3.2 diskutiert.



Abbildung 3: Wie Abbildung 2, allerdings für den Messstandort Lägern-Hochwacht.

#### 3.1.3 Früebüel

Die Treibhausgasmessungen in Früebüel befinden sich am selben Standort wie die von der ETH Zürich durchgeführten Kohlenstoffdioxid-Flussmessungen (Swiss FLUXNET, Zeeman et al., 2010). Früebüel befindet sich auf dem Plateau des Zuger Berges, ca. 500 m oberhalb des Zuger Sees (süd-westlich der Station). Die Umgebung besteht aus einer Mischung aus land- und forstwirtschaftlichen Flächen. Der nächst gelegene landwirtschaftliche Betrieb mit einem Nutztierbestand von 50 bis 100 Kühen befindet sich ca. 300 m süd-westlich der Station. Die nächste Ortschaft (Walchwil) liegt ca. 2 km süd-westlich am Ufer des Zugersees, während die Ortschaft Zug ca. 10 km entfernt ist. Ein ausführlicher Vergleich zwischen den bodennahen Messungen in Früebüel (Bergstation) mit den nahe und auf gleicher Höhe gelegenen Messungen in Beromünster (Turm) wird bei Bamberger et al. (2015) präsentiert.

Der Zugerberg wird im COSMO7 Modell nur unvollständig abgebildet. Während sich der Messstandort in Realität auf einem Plateau oberhalb eines Süd-West-Hangs befindet, wird im Modell eher ein Nord-West-Hang ohne Plateau dargestellt. Auch hier wird die Stationshöhe mit ~710 m im Modell unterschätzt.



Abbildung 4: Wie Abbildung 2, allerdings für den Messstandort Früebüel.

#### 3.1.4 Gimmiz

Die Messungen in Gimmiz befinden sich auf dem 32 m hohen Wasserturm der Gemeinde Gimmiz in der Seeland Region und werden von der Universität Bern erhoben. Die Umgebung des Turms ist flach und dominiert von landwirtschaftlichen Nutzflächen (hauptsächlich Ackerbau, insbesondere Gemüseanbau). Die nächst gelegenen landwirtschaftlichen Betriebe befinden sich ca. 250 m nord-östlich (Kuhhaltung) und 1 km süd-westlich (Pferdehaltung). Die nächste grössere Ortschaft ist Aarberg (< 5000 Einwohner) ca. 2.5 km süd-östlich des Standorts. In Aarberg befindet sich neben einem grossen Zuckerproduzenten mit eigener Abwasserreinigungsanlage auch ein grosses Kompost- und Erdaufbereitungswerk. Zusammen stellen diese eine grosse, lokale Quelle von Treibhausgasen dar, die potentiell starken Einfluss auf die Messungen in Gimmiz haben könnte. Im Gegensatz zu allen anderen Stationen des CarboCount-CH Netzwerks, gibt das COSMO7 Modell die flache Topographie in Gimmiz sehr gut wieder, allerdings wird die Höhe um 50 m überschätzt.



Abbildung 5: Wie Abbildung 2, allerdings für den Messstandort Gimmiz.

#### 3.1.5 Jungfraujoch

Die Forschungsstation Jungfraujoch (3580 m.ü.M.) befindet sich am nördlichen Alpenrand auf einem Pass zwischen dem Mönch (4107 m.ü.M.) und der Jungfrau (4158 m.ü.M.). Aufgrund der erhöhten Lage befindet sich die Station meistens in der freien Troposphäre und ist damit meist nicht durch regionale Quellen beeinflusst. Zeitweise gelangen jedoch durch den Transport von Luftmassen aus tieferen Lagen anthropogene Spurengase aus regionalen und europäischen Quellen bis zur Höhe des Jungfraujochs. Die komplexe Topographie der Jungfrauregion kann vom COSMO7 Modell nur sehr eingeschränkt repräsentiert werden. Während das Jungfraujoch in Realität einen Sattelpunkt zwischen der Jungfrau und dem Mönch darstellt, befindet es sich im Modell an einem nord-westlichen Hang.



Abbildung 6: Wie Abbildung 2, allerdings für den Messstandort Jungfraujoch. Bezüglich der Landnutzung in a) entsprechen graue Flächen Felsen und türkisfarbene Flächen permanenter Schnee- und Eisbedeckung.

In der Forschungsstation Jungfraujoch befindet sich die Messeinrichtung des Nationalen Beobachtungsnetzes (NABEL), welches vom BAFU und der Empa betrieben wird. Diese Messstation erfasst mehr als 90 reaktive Gase und Treibhausgase und trägt damit zu internationalen Messprogrammen wie dem "European Monitoring and Evaluation Programme" (EMEP) der UNECE und dem "Global Atmosphere Watch" (GAW) der WMO bei.

Seit Januar 2010, wird CH<sub>4</sub> am JFJ ebenfalls mit einem CRDS System gemessen (Picarro G1301 und Picarro G2401 seit September 2011). Das Picarro wird alle 46 Stunden mit zwei Standardgasen kalibriert. Weiterhin

wird alle 15 Stunden ein weiteres Kalibrationsgas vermessen, um kurzfristige Schwankungen der Gerätesensitivität zu erfassen. Alle CH<sub>4</sub> Daten werden auf der WMO X2004 Skala rapportiert.

#### 3.1.6 Schauinsland

Die Messstation Schauinsland wird vom Deutschen Umweltbundesamt betrieben und liegt auf einer Bergkuppe (1205 m ü.M.) im südlichen Schwarzwald etwa 10 Kilometer südöstlich von Freiburg und ca. 50 km nördlich der Schweizer Grenze. Wie an der Station Jungfraujoch werden in Schauinsland langfristig eine Reihe reaktiver Gase, Treibhausgase und Aerosolparameter erfasst und an internationale Messprogramme EMEP und GAW weitergegeben. Auch wenn deutlich tiefer gelegen als Jungfraujoch befindet sich die Station Schauinsland ebenfalls häufig oberhalb der planetaren Grenzschicht, wird aber auch episodisch durch direkten Transport aus der planetaren Grenzschicht stark beeinflusst. Die Station ist bis auf den südlichen Sektor von Wäldern umgeben. Der Südhang ist von Wiesenlandschaften dominiert. Die nächste, kleine Ortschaft liegt ca. 1.5 Kilometer in Richtung Süden. Während Schönwetterlagen kann es häufig zu einer Advektion von verschmutzten Luftmassen aus Freiburg und dem Oberrheingraben kommen. Erneut ist es dem COSMO7 Modell nicht möglich, die komplexe Topographie im Bereich der Station abzubilden. Im Modell befindet sich die Station an einem Nord-West-Hang und liegt rund 450 m tiefer als in Realität.

Die CH<sub>4</sub> Messungen in Schauinsland wurden ebenfalls mit einem "cavity ring down" Spektrometer (Picarro) durchgeführt, auf die WMO X2004 Skala kalibriert und als Molfraktion in trockener Luft angegeben.



Abbildung 7: Wie Abbildung 2, allerdings für den Messstandort Schauinsland.

# 3.2 Transportsimulationen

Der Transport von CH<sub>4</sub> von den Emissionsquellen zu den Messstationen wurde mit dem Lagrange'schen Partikel Dispersion Modell (LPDM) FLEXPART (Stohl et al., 2005) simuliert. Dabei kamen zwei verschiedene Versionen des Modells zum Einsatz. Erstens 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. Zweitens wurde die Standardversion von FLEXPART (Version 9.01) mit 3-stündigen Analysefeldern des Europäischen Zentrums für Mittelfrist Wetter Vorhersage (ECMWF) verwendet. Diese Felder haben eine horizontale Auflösung von 0.2° x 0.2° im Alpenraum und 1° x 1° für den Rest der Welt. Der Einfluss des verwendeten Transportmodells auf die Emissionsabschätzung wird in Abschnitt 5.7 behandelt.

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,  $\chi_t$ , am Freisetzungspunkt berechnet werden. Allerdings beschreibt diese Molfraktion lediglich den Teil der Gesamtmolfraktion,  $\chi$ , der während des Zeitraums der Transportsimulation aufgenommen wurde. Um die Gesamtmolfraktion zu erhalten, muss eine Basismolfraktion,  $\chi_b$ , addiert werden, die den grossskaligen Konzentrationshintergrund beschreibt. Letztere ergibt sich aus dem Mittel der Molfraktionen,  $\chi_k$ , an den Endpositionen der im Modell simulierten Partikel, welche zum Beispiel durch räumliche Inter-

polation 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

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

wobei K die Anzahl Modellpartikel angibt.

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. In der ECMWF Version des Modells wurde der Transport der Partikel dagegen für 124 Stunden durchgeführt. Ausserdem war es für Partikel in diesem Fall nicht möglich, die globale Domain frühzeitig zu verlassen. Wie oben diskutiert, kann die gewählte Modellauflösung 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 CarboCount-CH 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 "low" benannt, während die Starthöhen, die der Höhe über Meer entsprechen, mit "high" bezeichnet werden.

Emissionssensitivitäten wurden auf einem gröberen Gittern mit einer Auflösung von 0.16° x 0.12°, das Westeuropa umfasst, ausgegeben. Zusätzlich wurde ein feineres Gitter für die kleinere Region über dem Alpenraum mit einer Auflösung von 0.02° x 0.015° gespeichert. Für beide Gitter wurden für FLEXPART-COSMO Emissionssensitivitäten zwischen dem Boden und 50 m über Grund evaluiert, während für FLEXPART-ECWMF eine Obergrenze von 100 m gewählt wurde.

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,	615	212 ü.G.
					132, <b>212</b>		1014 ü.M.
Lägern Hochwacht	LAE	8.3973	47.4822	840	32	492	100-200 ü.G.
							200-300 ü.G.
Früebüel	FRU	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.
Jungfraujoch	JFJ	7.9851	46.5475	3580	3	2650	3100 ü.M.
Schauinsland	SSL	7.9167	47.9000	1205	10	750	980 ü.M.

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

# 3.3 Inversionssysteme

Zwei verschiedene Inversionssysteme wurden für die vorliegende Analyse verwendet: ein Bayesischer Ansatz und ein Kalman-Filter Ansatz. Beide Systeme wurden unabhängig an der Empa implementiert. Ein Vergleich beider Systeme stellt einen wichtigen Konsistenztest der gewonnen Ergebnisse dar. Als Hauptsystem wurde die Bayesische Inversion verwendet.

Beide Systeme haben gemein, dass man die simulierten Molfraktionen in Matrizenschreibweise formuliert (Matrizen werden im Folgenden in fetter Schreibweise notiert):

$$\chi = M x.$$

(2)

Wobei  $\chi = (\chi_1 \quad \cdots \quad \chi_m)$  die simulierten Molfraktionen zu verschiedenen Zeitpunkten und an verschiedenen Stationen bezeichnet. m ist dabei die totale Anzahl Messungen von allen Standorten.  $x = \begin{pmatrix} \chi_1 \\ \vdots \\ \ddots \end{pmatrix}$  ist der sogenannte Zustandsvektor, der neben den Emissionen in verschiedenen Gitterzellen auch Elemente, die die Basismolfraktionen beschreiben oder andere Parameter, enthalten kann. n gibt die Anzahl von zu bestimmenden Unbekannten an. **M** ist die Sensitivitätsmatrix

$$\boldsymbol{M} = \begin{pmatrix} M_{1,1} & \cdots & M_{m,1} \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ M_{1,n} & \cdots & M_{m,n} \end{pmatrix}$$
(3)

die für jedes  $M_{i,j}$  die Sensitivität zum Zeitpunkt/Standort i zum j-ten Element des Zustandsvektors angibt. Sind nur Emissionen im Zustandsvektor enthalten, entspricht eine Zeile in **M** der Summe im ersten Term von Gleichung (1) zu einem bestimmten Zeitpunkt/Standort.

Mit Hilfe der gemessenen Molfraktionen,  $\chi_o$ , wird nun ein optimaler Zustand von x ermittelt, so dass die Differenz zwischen Simulation und Beobachtung möglichst klein wird.

#### 3.3.1 Bayesische Inversion

Würde man in Gleichung (2) die simulierten Molfraktionen, $\chi$ , durch die gemessenen,  $\chi_o$ , ersetzen, könnte man direkt versuchen, das Gleichungssystem nach x zu lösen. Allerdings ist das System meist unterbestimmt, sodass sich keine eindeutige Lösung von x finden lässt. In der Bayesischen Inversion nimmt man daher einen Anfangszustand (a-priori) des Zustandsvektors, x<sub>b</sub>, und dessen Wahrscheinlichkeitsverteilung zur Hilfe und bestimmt den optimalen Zustand von x unter der Annahme der a-priori Wahrscheinlichkeitsverteilung.

Mathematisch lässt sich dies über eine Kostenfunktion, J, beschreiben, die es zu minimieren gilt

$$J = \frac{1}{2}(x - x_b)^T \boldsymbol{B}^{-1}(x - x_b) + \frac{1}{2}(\boldsymbol{M}x - \chi_o)^T \boldsymbol{R}^{-1}(\boldsymbol{M}x - \chi_o).$$
<sup>(4)</sup>

Dabei beschreibt der erste Term auf der rechten Seite von Gleichung (4) die Abweichung des zu ermittelnden Zustands vom a-priori Zustand und der zweite Term die Differenzen zwischen Simulation und Messung. In der hier verwendeten Bayesischen Inversion enthält der Zustandsvektor neben den Emissionen ebenfalls 5-tägige Elemente der Basiskonzentrationen für jede in der Inversion verwendete Station (siehe unten). Die Kovarianzmatrizen, **B** und **R**, geben die Unsicherheit des a-priori Zustands beziehungsweise die kombinierte Mess- und Modellunsicherheit an. **B** ist eine n x n Matrix, während **R** eine m x m Matrix ist.

Durch analytische Minimierung von J lässt sich direkt der optimierte Zustand (a-posteriori) von x angeben

$$x = x_b + BM^T (MBM^T - R)^{-1} (\chi_o - Mx_b).$$
<sup>(5)</sup>

Hier ist die inverse Matrix von **S**=(**MBM**<sup>T</sup>-**R**), einer n x n Matrix, zu berechnen. Dies erfolgt in der vorliegenden Implementierung über LU Faktorisierung (Funktion DGESVX aus dem Paket LAPACK). Neben dem a-posteriori Zustand lässt sich auch dessen Unsicherheit, repräsentiert durch die Kovarianzmatrix, **A**, direkt angeben

$$\boldsymbol{A} = \boldsymbol{B} - \boldsymbol{B}\boldsymbol{M}^T \boldsymbol{S}^{-1} \boldsymbol{M} \boldsymbol{B}. \tag{6}$$

Aus A lässt sich wiederum die Unsicherheit für die totalen Emissionen einer Region angeben

$$\sigma_E = f^T A f , \tag{7}$$

wobei der Vektor f den Anteil einer Region an den Emissionen einer Gitterzelle angibt. Liegt die Gitterzelle innerhalb der Region nimmt das entsprechende Element von f den Wert 1 an, liegt sie komplett ausserhalb, den Wert 0.

Um die Grösse des zu lösenden Systems zu reduzieren, wurden im Zustandsvektor nicht die Emissionen auf dem hochauflösenden Ausgabegitter des Transportmodells verwendet. Stattdessen wurde das Gitter entsprechend der totalen über alle Zeiten und Standorte summierten Emissionssensitivität aggregiert. In Regionen, in denen eine hohe totale Emissionssensitivität vorlag, bleibt so die Gitterauflösung hoch, während in Regionen mit geringer Emissionssensitivität die Gitterauflösung reduziert wird. Ausgehend von der Ausgangsauflösung von 0.02° x 0.015° wurden aggregierte Gitterzellen mit einer maximalen Grösse von 2.56° x 1.92° gebildet. Das daraus resultierende Inversionsgitter enthielt je nach Inversionskonfiguration zwischen 700 und 800 aggregierte Gitterzellen, die einen Teil der Elemente des Zustandsvektors bildeten. Ein Beispiel für das so reduzierte Inversionsgitter ist in Abbildung 8 dargestellt. Im linken Teil der Abbildung sind die totalen Emissionssensitivitäten auf dem regulären Ausgabegitter zu sehen, während auf der rechten Seite die totalen Emissionssensitivitäten des reduzierten Gitterzelle. Im reduzierten Gitter ist zu erkennen, dass die Sensitivitäten pro Gitterzelle auch in entfernten Regionen ähnlich hoch sind wie in Stationsnähe, während sie auf dem regulären Gitter verschwindend gering erscheinen.



Abbildung 8: Totale Emissionssensitivitäten für die Basis-Inversion mit niedrigen Starthöhen (links) auf dem regulären Ausgabegitter und (rechts) auf dem reduzierten Inversionsgitter.

Da in der vorliegenden Untersuchung die Basiskonzentration von CH<sub>4</sub> nicht aus bereits vorhanden, unabhängigen Modellsimulationen verwendet werden konnte, musste der zweite Term in Gleichung (1) ebenfalls aus den Messungen abgeschätzt werden. Diese Schätzung basiert auf der in Abschnitt 3.1 erwähnten Bestimmung der Basislinie. Für die Verwendung in der Inversion wurde für alle Stationen die für Jungfraujoch bestimmte Basislinie verwendet. Da diese Basisline nur eine mit Unsicherheiten behaftete Schätzung ist und abhängig von der Station aber auch der Transportsimulation selbst sein kann, wurde die Basislinie als Teil des Zustandsvektors ebenfalls in die Inversion integriert. Dabei wurde der Ansatz von Stohl et al. (2009) verwendet, der die Basislinie an definierten Stützstellen (zeitlich) in den Zustandsvektor aufnimmt und die notwendigen Sensitivitäten in **M** als zeitlich lineare Interpolation zwischen zwei benachbarten Stützstellen formuliert. Diese Basislinie wurde unabhängig für jede Station aufgenommen und mit einem Abstand von 5 Tagen für die Stützstellen formuliert. Die Sensitivität der Inversionsergebnisse bezüglich der Behandlung der Basislinie werden in Abschnitt 5.5 diskutiert.

#### 3.3.2 Kalman-Filter Inversion

Die zweite, als Vergleich verwendete Inversion basiert auf einem erweiterten Kalman-Filter und ist im Detail in Brunner et al. (2012) beschrieben. Analog zur Bayesischen Inversion wird ein a-priori Zustandsvektor x<sub>b</sub> verwendet, der das a-priori Wissen über die Emissionen vor dem Einbezug der Information aus den Messungen beschreibt. Im Unterschied zur Bayesischen Inversion, in der sämtliche Messungen gleichzeitig verwendet werden, um den optimierten a-posteriori Zustand x zu bestimmen (5), werden beim Kalman-Filter die Messdaten sequentiell "assimiliert". Kalman-Filter und Bayesische Inversion sind unter gewissen Umständen äquivalent (Kalnay, 2002). Der hier verwendete Kalman-Filter wurde jedoch um zwei Aspekte erweitert, sodass die Äquivalenz nicht mehr gewährleistet ist. Zum einen wurden im Zustandsvektor die Emissionen  $E_{i,i}$  durch ihre Logarithmen  $\log(E_{i,i})$  ersetzt, was den Vorteil hat, dass die Lösung keine negativen Emissionen zulässt. Dadurch wird das Problem nicht-linear und erfordert die Anwendung eines erweiterten Kalman-Filters. Zum anderen wird kein zeitlich konstanter Zustand geschätzt, sondern ein Zustand, der sich zeitlich langsam verändern darf. So können zeitliche Variationen der Emissionen wie saisonale oder Jahr-zu-Jahr-Schwankungen beschrieben werden. Für den Vergleich mit der Bayesischen Inversion werden hier aber nur Jahresmittel betrachtet. Analog zur Bayesischen Inversion werden die Unsicherheiten des a-priori Zustandes sowie der kombinierten Modell- und Messunsicherheit durch die Fehlerkovarianzmatrizen B und R beschrieben. Zusätzlich wird eine Kovarianzmatrix Q definiert, welche die Unsicherheit beschreibt, wie sich der Zustand von einem Zeitpunkt zum nächsten verändert.

#### 3.3.3 Konstruktion der Fehlerkovarianzen

Eine entscheidende Rolle in der Inversions-Rechnung spielt die Formulierung der Kovarianzmatrizen **B** und **R** in Gleichung (4). Beide Matrizen sind symmetrisch, so dass  $B_{i,j} = B_{j,i}$  und  $R_{i,j} = R_{j,i}$ . **B** beschreibt die Kovarianzstruktur der Unsicherheiten des a-priori Zustandsvektors und enthält eine Blockmatrix für die Kovarianzen der

Emissionsstärken, **B**<sup>E</sup>, und die Kovarianzen der Basislinie, **B**<sup>B</sup>. Innerhalb der Blöcke werden Korrelationen berücksichtigt, d.h. Elemente auf den Nebendiagonalen können ungleich Null sein. Zwischen den Blöcken sind diese jedoch Null, d.h. die Unsicherheiten der Emissionen werden als nicht korreliert mit den Unsicherheiten der Basislinien betrachtet. Die Diagonalelemente von **B**<sup>E</sup> wurden proportional zum a-priori Fluss in der Gitterzelle angenommen  $B_{i,i}^E = (fx_{b,i})^2$ . Neben den Diagonalelementen von **B**<sup>E</sup> wurden auch die Nebenelemente gefüllt, indem eine räumliche Korrelation der Fehler angenommen wurde, die exponentiell mit dem Abstand zwischen zwei Gitterzellen abfällt

$$w_{i,i} = e^{-\frac{d_{i,j}}{L}}.$$

Dabei wurde die Korrelationslänge, L, auf 50 km festgelegt und der Abstand, d<sub>i,j</sub>, als Grosskreisdistanz zwischen den Gitterzellenzentren ermittelt. Für die Nebenelemente ergibt sich damit

$$B_{i,j}^{B} = w_{i,j} \sqrt{B_{i,i}^{B}} \sqrt{B_{j,j}^{B}}.$$
(9)

Der Faktor f wurde letztlich so gewählt, dass sich für die Gesamtemissionen der Schweiz eine relative Unsicherheit von 16 % ergibt. Dies entspricht der Abschätzung von Hiller et al. (2014).

Für die Diagonalelemente von **B**<sup>B</sup> wurde die Unsicherheit der Basislinienbestimmung verwendet,  $B_{i,j}^B = f_B \sigma_B^2$ , wobei der Faktor f<sub>B</sub> in der Basis-Inversion auf 1 gesetzt wurde. Die Unsicherheit der Basislinie,  $\sigma_B$ , betrug für die Station Jungfraujoch 17.4 ppb. Zusätzlich wurde eine zeitliche Korrelation des Hintergrunds angenommen, so dass

$$B_{i,j}^E = e^{-\frac{\Delta t_{i,j}}{\tau_B}} \sqrt{B_{i,i}^E} \sqrt{B_{j,j}^E}.$$
(10)

Dabei bezeichnet  $\Delta t_{i,j}$  den zeitlichen Abstand zwischen zwei Stützstellen der Basislinie an einer Station und  $\tau_B$  die Korrelationslänge der Basislinie. In der Basis-Inversion wurde letztere auf 14 Tage festgelegt. Die Kovarianz der Basislinien zwischen zwei Stationen wurde auf null gesetzt, so dass diese völlig unabhängig voneinander bestimmt wurden.

Für die Berechnung der Diagonalelemente von **R** wurde sowohl die Mess- als auch die Modellunsicherheit berücksichtigt

$$R_{i,i} = \sigma_o^2 + \sigma_{min}^2 + \sigma_{srr}^2 (M_i x_b)^2$$
(11)

Dabei beschreibt  $\sigma_o$  die Messunsicherheit, wie sie aus den Konzentrationsmessungen für jeden 3-stündlichen Mittelwert ermittelt wurde.  $\sigma_{min}$  und  $\sigma_{srr}$  beschreiben die Unsicherheit des Transportmodells.  $\sigma_{min}$  beschreibt dabei einen konstanten Term, der für alle Zeitpunkte an einer Station konstant ist, während der zweite Term die relative Modellunsicherheit proportional zur simulierten a-priori Konzentration zum Zeitpunkt i angibt (vergleiche, Brunner et al., 2012).

Für die Basis-Inversion wurden  $\sigma_{min}$  und  $\sigma_{srr}$  aus den Modellresiduen der a-priori Simulation bestimmt. Dazu wurden die Modellresiduen gegen die simulierten a-priori Konzentrationen aufgetragen. Ein Beispiel ist in Abbildung 9 gegeben. Für Teilbereiche entlang der x-Achse, die je 20 % der Daten enthielten, wurde die Wurzel des mittleren quadratischen Fehlers (RMSE) zwischen a-priori Simulation und Beobachtung gebildet (rote Punkte in Abbildung 9). Anschliessend wurde durch die 5 erhaltenen Punkte eine Gerade angepasst, deren Steigung und Achsenabschnitt die gesuchten Parameter  $\sigma_{srr}$  und  $\sigma_{min}$  darstellen. Dieses Vorgehen ist ähnlich dem in Stohl et al. (2009) beschriebenen, wobei dort lediglich der Parameter  $\sigma_{min}$  aus dem RMSE aller Residuen bestimmt wird und anschliessend eine Anpassung der einzelnen Element R<sub>i,i</sub> durchgeführt wird, um eine Normalverteilung der gewichteten Modellresiduen zu erzwingen. Weiterhin wird bei Stohl et al. (2009) ein iterativer Ansatz verfolgt, bei dem die Modellresiduen nach einem ersten Inversionsschritt re-evaluiert werden und die Inversion mit neuen Werten für R<sub>i,i</sub> wiederholt wird. In dieser Studie wurde auf eine derartige Iteration verzichtet, da dies zu grundsätzlich kleineren Werten von  $\sigma_{min}$  führt und damit den Beobachtungen ein grösseres Gewicht gibt, was zu einem Überfitten und fehlerhaften a-posteriori Emissionen führen kann. Der Einfluss von  $\sigma_{min}$  nud  $\sigma_{srr}$  auf die Inversionsergebnisse wird in Abschnitt 5.6 diskutiert.

Die Nebenelemente von **R** wurden über eine zeitliche Korrelationslänge,  $\tau_o$ , festgelegt, um die atmosphärischen Messungen und Simulationen inhärente Autokorrelation zu berücksichtigen

$$R_{i,j} = e^{-\frac{\Delta t_{i,j}}{\tau_o}} \sqrt{R_{i,i}} \sqrt{R_{j,j}}.$$
(12)

Dabei beschreibt  $\Delta t_{i,j}$  hier den zeitlichen Abstand zwischen zwei Messungen an derselben Station und  $\tau_o$  wurde auf eine Wert von 0.5 Tagen festgesetzt (vergleiche z.B. Thompson et al., 2011). Zwischen verschiedenen Stationen wurde keine Korrelation angenommen.

Für die Kalman-Filter Inversion wurden die gleichen Annahmen gemacht bezüglich der Parameter  $\sigma_0$ ,  $\sigma_{min}$ ,  $\sigma_{srr}$  und der Korrelationslänge L. Hingegen wurden zeitliche Korrelationen in der Matrix **R** vernachlässigt, weil jeweils nur ein einziger Messwert pro Tag verwendet wurde (Mittelwert zwischen 12 und 18 Uhr) und diese Tageswerte bei einer angenommenen Korrelationslänge von 0.5 Tagen nur sehr wenig (< 10%) korreliert wären.



Abbildung 9: Bestimmung der Modellunsicherheit als Funktion der simulierten a-priori Konzentration für das Beispiel der Basis-Inversion und für die Messungen/Simulation vom Standort Beromünster.

## 4 Explorative Datenanalyse

Die explorative Datenanalyse dient zur besseren Charakterisierung der an den neuen CarboCount-CH gemessenen Stationen. Da es sich bei diesen Stationen nicht um etablierte Standorte handelt, soll hier analysiert werden, wofür die Messungen repräsentativ sind und welchen lokalen Einflüssen sie ausgesetzt sind. Diese Informationen sind für eine geeignete Datenauswahl für die Inversionsrechnung erforderlich, um mögliche Modellfehler, die aufgrund von Repräsentativitätsproblemen erwachsen, so gering wie möglich zu halten. Ausserdem soll hier ein erster Versuch unternommen werden, die Schweizer CH<sub>4</sub> Emissionen aus den beobachteten Verhältnissen zwischen CH<sub>4</sub> und CO abzuschätzen.

Ähnlich wie bei der Konzentrationssimulation durch ein Lagrange'sches Modell kann man annehmen, dass die beobachteten Konzentrationen aus zwei Anteilen bestehen: (i) einem zeitlich und räumlich langsam variierenden, grossräumigen Hintergrund (Basislinie) und (ii) schnell variierenden Erhöhungen über dem Hintergrund, die durch Emissionen in den letzten Tagen vor der Messung verursacht wurden. Aus den Messdaten selbst kann man nun mit Hilfe eines statistischen Filters bereits eine Basislinie bestimmen, die als erste Abschätzung des vom Modell benötigten Basiswerts dienen kann (siehe Abschnitt 3.2). Für die Berechnung der Basislinie aus den Messungen wurde hier die REBS Methode nach Ruckstuhl et al. (2012) verwendet, die iterativ Messwerte auswählt, die Teil der Basislinie sind. Für die Berechnung der Basislinie sowie für die folgenden Analysen wurden Stundenmittel der Messdaten verwendet, während für den Vergleich mit den Modellsimulationen und für die Verwendung in der Inversion 3-Stunden Mittelwerte der absoluten CH<sub>4</sub> Konzentration und der Basiskonzentration gebildet wurden.

Abbildung 10 zeigt die Stundenwerte aller in dieser Studie verwendeten CH<sub>4</sub> Beobachtungsdaten zusammen mit den berechneten CH<sub>4</sub> Basislinien. Die Variabilität der CH<sub>4</sub> Konzentrationen an den verschiedenen Stationen lässt bereits Rückschlüsse auf deren relative Lage zu den Emissionsquellen zu. Die Stationen Beromünster (BEO) und Lägern-Hochwacht (LAE) weisen ähnliche, moderate Variabilität auf, mit den höchsten Konzentrationen während der Herbst- und Wintermonate. Die Basislinien folgen den niedrigsten gemessen Konzentrationen, können allerdings nicht jeder kurzfristigen Schwankung nachgehen. Insgesamt ist der Verlauf an beiden Stationen ähnlich und weist häufig dieselben Episoden mit erhöhten Konzentrationen auf. Die Konzentrationsvariabilität war an den Stationen Früebüel (FRU) und insbesondere Gimmiz (GIM) deutlich erhöht (siehe angepasste y-Achse). In Gimmiz wurden häufig Stundenmittelwerte > 2500 ppb erreicht. Der Verlauf in Gimmiz scheint stärker vom Verlauf an den anderen drei CarboCount-CH Stationen entkoppelt zu sein, was darauf hinweist, dass lokale Quelle an dieser Station eine wichtige Rolle spielen. Die beiden höher gelegenen Stationen Schauinsland (SSL) und besonders Jungfraujoch (JFJ) zeigten deutlich reduzierte Variabilität im Vergleich zu den CarboCount-CH Stationen. Für Jungfraujoch sind nur noch wenige ausgeprägte Belastungsperioden zu erkennen, und die Konzentrationen lagen meist unter 2000 ppb.



Abbildung 10: Zeitserien der CH₄ Stundenmittelwerte an den verwendeten Stationen: Beromünster, Lägern-Hochwacht, Früebüel, Gimmiz, Schauinsland, Jungfraujoch (von oben nach unten). Die glatten blauen Kurven repräsentieren die ermittelten Basislinien für jede Station. Für jede Station wurden verschiedene y-Achsen gewählt.

# 4.1 Tagesgänge

In diesem Abschnitt sollen die typischen Tagesgänge der CH<sub>4</sub> Konzentration an den CarboCount-CH Stationen analysiert werden. Dies kann Aufschluss über die relative Position der Station in der planetaren Grenzschicht liefern und helfen, die für die Inversion am besten geeigneten Daten bezüglich der Tageszeit auszuwählen.



Abbildung 11: Mittlerer relativer Tagesgang der CH<sub>4</sub> Konzentration an den Stationen (a) Beromünster 212 m, (b) Lägern Hochwacht, (c) Früebüel und (d) Gimmiz. Die verschiedenen Farben geben den Tagesgang für (schwarz) alle Daten, (rot) Winter, (grün) Frühling, (blau) Sommer und (violett) Herbst. Die y-Achsen sind an die jeweilige Station angepasst.

In Abbildung 11 sind die relativen CH<sub>4</sub> Tagesgänge an den CarboCount-CH Stationen für verschiedene Jahreszeiten aufgetragen. Relativ bedeutet hier, dass die Tagesmittelkonzentrationen vor der Mittelwertbildung abgezogen wurden. Für die Stationen Beromünster und Lägern-Hochwacht wurden relativ ähnlich Tagesgänge beobachtet. Diese wiesen insbesondere im Sommer, wenn die Entwicklung der planetaren Grenzschicht hauptsächlich konvektiv getrieben ist, aber auch im Herbst und Frühling ein klares Vormittagsmaximum auf. Dieses war in Beromünster etwas klarer definiert und ereignete sich eine Stunde später (10 UTC) als in Lägern-Hochwacht. Im Gegensatz dazu wies die Station Früebüel im Sommer einen Tagesgang mit erhöhten nächtlichen Konzentrationen und Minimalkonzentrationen am Nachmittag auf, während zu anderen Jahreszeiten eher ein Nachmittagsmaximum beobachtet wurde. Auch in Gimmiz konnten die höchsten (niedrigsten) Konzentrationen nachts (tagsüber) beobachtet werden. Allerdings war die Amplitude des Tagesgangs fast eine Grössenordnung grösser als in Früebüel, die höchste Konzentration eindeutig vor Sonnenaufgang beobachtbar und der Tagesgang zu allen Jahreszeiten ähnlich und wohldefiniert. Insgesamt entsprechen die beobachteten Tagesgänge denen, die man für ein Spurengas mit relativ konstanten Emissionen über den Tagesverlauf erwarten würde. Den ausgeprägtesten Tagesgang würde man noch in den Methanemissionen der Wiederkäuer erwarten, während andere Emissionsprozesse eher langsam mit der Zeit variieren dürften. In einem Feldversuch mit grasenden Milchkühen im westlichen Schweizer Mittelland wurden mittlere Emissionsschwankungen von bis zu 30 % im Tagesverlauf gemessen (Felber et al., 2015). Die niedrigsten Emissionen traten dabei am Morgen und die höchsten gegen Abend auf und konnten der Fressaktivität der Kühe zugeordnet werden. Letzteres spricht dagegen, die gefundenen Tagesgänge zu verallgemeinern, da sehr verschiedene Futterzyklen je nach Haltungstyp der Kühe zu erwarten sind. Ausserdem besteht die Möglichkeit, dass der beobachtete Tagesgang noch von Schwankungen der atmosphärischen Stabilität beeinflusst wurde, die mit Hilfe der Messmethode nicht vollständig kompensiert werden konnten.

Im Folgenden gehen wir also davon aus, dass der Tagesgang der gesamthaften Methanemissionen aus allen Quellprozessen nicht relevant ist. Mit dieser Annahme lässt sich aus den beobachteten Methanverläufen an den CarboCount-CH Stationen die relative Position der Messpunkte in der planetaren Grenzschicht ableiten. Gimmiz kann eindeutig als eine Station identifiziert werden, die auch nachts innerhalb der bodennahen Mischungsschicht verbleibt. In der meist stabilen (daher austauscharmen) und dünnen nächtlichen Grenzschicht können Emissionen in kurzen Zeiträumen zu relativ hohen Konzentrationen akkumulieren. Tagsüber steigt die Mischungsschichthöhe an und Konzentrationen in Bodennähe werden durch Mischung mit methanärmerer Luft aus höheren Schichten reduziert. Die Standorte Lägern-Hochwacht und Beromünster erfahren die höchsten Konzentrationen hingegen nicht nachts, sondern einige Stunden nach Sonnenaufgang. Die beiden Stationen scheinen nachts also von den Flüssen am Boden entkoppelt zu sein. Im weiteren Tagesverlauf führt dann das Ansteigen der täglichen Mischungsschicht und das damit verbundene zunehmende Anheben und Mischen der erhöhten, bodennahen Konzentrationen zu der beobachteten Maximalkonzentration. Am Nachmittag reduzieren sich die Konzentrationen erneut, da die Mischungsschichthöhe weiter ansteigt. In Früebüel erscheint die Situation komplexer. Der nächtliche Anstieg in den Sommermonaten kann wahrscheinlich auf die lokalen CH<sub>4</sub> Emissionen zurückgeführt werden. In den Übergangsjahreszeiten sind entweder diese Emissionen reduziert oder es bilden sich nicht im gleichen Masse stabile nächtliche Grenzschichten aus, die eine Akkumulation lokaler Emissionen ermöglichen. Andererseits scheinen ein Anwachsen der planetaren Grenzschicht oder auch ein Herantransport belasteter Grenzschichtluft über Hangwinde die Ursache für die erhöhten Nachmittagskonzentrationen zu sein.

Diese Interpretationen werfen die Frage auf, in wie weit Transportmodelle die diskutierte Dynamik der Grenzschicht ohne systematische Abweichungen abbilden können. Grundsätzlich haben Transportmodelle Probleme, das Mischen und die Akkumulation in der nächtlichen Grenzschicht korrekt wiederzugeben. Auch der zeitliche Ablauf des Grenzschichtwachstums am Vormittag wird häufig nicht korrekt wiedergegeben. Dagegen sollten die Werte in der gut durchmischten, relativ hohen nachmittäglichen Grenzschicht gut wiedergegeben werden. Weiterhin ist zu berücksichtigen, dass ein Standort, der von lokalen, thermischen Windsystemen stark beeinflusst wird, für die hier verwendete Modellauflösung eine grosse Herausforderung darstellt. Dies dürfte für die beiden Bergstationen Lägern-Hochwacht und Früebüel zutreffen. Doch im Gegensatz zum Standort Früebüel scheint sich die Messstation Lägern-Hochwacht eher wie ein "hoher Turm" zu verhalten, denn typische Merkmale thermischer Windsysteme sind eher nicht erkennbar.

Diesen Überlegungen folgend wurden in der Inversionsrechnung lediglich die Nachmittagswerte der Stationen Beromünster und Lägern-Hochwacht verwendet, während die Daten der Stationen Früebüel und Gimmiz zur Validierung herangezogen wurden. Zusätzlich wurden noch die nächtlichen Werte der hoch gelegenen Stationen Schauinsland und Jungfraujoch verwendet. Diese sind, im Gegensatz zu Früebüel, nachts nicht lokal beeinflusst, können aber tagsüber durch komplexe, thermische Transportsysteme beeinflusst sein. Der Einfluss dieser Stationsauswahl auf die Inversionsergebnisse wird in Abschnitt 5.3 diskutiert.

## 4.2 Regressionsanalyse

Die Korrelationsanalyse verschiedener in der Atmosphäre relativ stabiler Spurengase kann Aufschluss über deren Emissionsverhältnis geben. Sind die Emissionen des einen Spurengases besser bekannt und befinden sich die Emissionen in einer ähnlichen Umgebung, so lassen sich weiterhin aus dem gemessen Konzentrations- oder Immissionsverhältnis und den Emissionen der einen Substanz die Emissionen der anderen berechnen ("tracer ratio Methode"). Im vorliegenden Fall wurden neben den Konzentrationen von CH<sub>4</sub> auch die von CO<sub>2</sub> und CO gemessen. Da die CO<sub>2</sub> Flüsse eine starke biogene Komponente enthalten und damit grosser zeitlicher Variabilität unterliegen, sind CO<sub>2</sub>-CH<sub>4</sub> Korrelationen wenig geeignet um CH<sub>4</sub> Emissionen abzuschätzen. Dagegen haben CO Flüsse einen weniger starken Jahresgang und zumindest in der Schweiz keine signifikanten biogenen Anteile. Selbst wenn die CO Emissionsprozesse in Schweizer Mittelland und der integrierende Charakter des atmosphärischen Transports als Rechtfertigung dienen, eine Abschätzung der CH<sub>4</sub> Flüsse mithilfe einer Korrelationsanalyse zu wagen.

In Abbildung 12 sind die Regressionsplots zwischen CH<sub>4</sub>- und CO-Abweichungen über der Basislinie für die drei CarboCount-CH Stationen Beromünster, Lägern-Hochwacht und Gimmiz, sowie für die alpine Station Jungfraujoch dargestellt. Die Regressionen wurden jeweils für alle Daten sowie für einzelne Jahreszeiten ge-

rechnet. Dabei wurden alle Daten zu allen Tageszeiten verwendet und nicht nur die für die Inversion verwendeten Nachmittagswerte. Die ermittelten Korrelationskoeffizienten (nach Pearson) und Steigungen der Regressionsgeraden (berechnet mit der Methode gewichteter, totaler kleinster quadratischer Abweichung (Krystek and Anton, 2007)) sind in Tabelle 2 angegeben.

Das Emissionsverhältnis CH<sub>4</sub> zu CO für das Jahr 2013 betrug in der Schweiz laut Schätzungen des BAFU 0.987 Gg/Gg (205.9 Gg/yr Methan (FOEN, 2015a) zu 208.5 Gg/yr Kohlenstoffmonoxid (FOEN, 2015b)). Daraus ergibt sich ein in der Atmosphäre zu erwartendes Immissionsverhältnis der Molfraktionen von 1.73 (CH<sub>4</sub>/CO). Ausgehend von den CO Emissionen des Inventars und den berechneten Steigungen, wurden die CH<sub>4</sub> Emissionen der Schweiz abgeschätzt (siehe Tabelle 2). Die Unsicherheitsabschätzung dieser Emissionen basiert auf der geschätzten Unsicherheit der Steigung und der Annahme einer 10% Unsicherheit für die CO Emissionen.



Abbildung 12: Regressionsplots der CH<sub>4</sub>-Erhöhung gegen die CO-Erhöhung an den Stationen Beromünster (oben links), Lägern (oben rechts), Jungfraujoch (unten links) und Gimmiz (unten rechts). Die Messwerte sind nach der Jahreszeit eingefärbt (Winter: rot; Frühling: grün; Sommer: blau; Herbst: violett). Die Regressionsgeraden für die einzelnen Jahreszeiten sind gestrichelt, während diejenige für alle Daten durchgezogen ist. Die blaue, durchgezogene Linie gibt das CH<sub>4</sub>/CO Verhältnis des Schweizer Emissionsinventars an. Die Korrelationskoeffizienten nach Jahreszeit sind als Balkendiagramm in der jeweiligen oberen, linken Ecke gezeigt. Die ermittelten Steigungen CH<sub>4</sub>/CO sind als Balkendiagramm in der unteren, rechten Ecke angegeben. Das gemäss Emissionsinventar erwartete Verhältnis ist wiederum durch eine blaue Linie dargestellt.

Grundsätzlich waren die Korrelationen zwischen CH<sub>4</sub> und CO an allen Stationen in den Sommermonaten am wenigsten robust, während im Winter die grössten Korrelationskoeffizienten ermittelt wurden. Die guten Korrelationen und auch die ermittelten Regressionsgeraden kommen teilweise aufgrund der grossen Tageszeitlichen Schwankungen in den Beobachtungen zustande. Letztere reflektieren aber grösstenteils den Einfluss lokaler Emissionen. Es bleibt daher fraglich, wie repräsentativ die hier ermittelten Steigungen und Methanemissionen für die Gesamtschweiz sind. Die ermittelten Steigungen waren für die Stationen Beromünster und Lägern sehr ähnlich mit den grössten Werten im Sommer und den kleinsten im Frühjahr. Im Herbst und Winter lagen die ermittelten Steigungen relativ nah am erwarteten Verhältnis von 1.73 ppb/ppb lagen. Für alle Daten des ganzen Jahres ergab sich an beiden Stationen eine Steigung von ~1.2, d.h. relativ zu CO scheinen die CH4 Emissionen geringer gewesen zu sein, als das Schweizer Emissionsinventar suggeriert. Unter der Annahme zeitlich konstanter CO-Emissionen ergäbe sich für die CH<sub>4</sub> Emissionen ein Jahresgang mit höchsten Werten von ~240 Gg/yr im Sommer und geringsten im Frühling (~115 Gg/yr), während die Werte für Herbst und Winter nahe bei den erwarteten Werten lägen. Ein derart ausgeprägter Jahresgang ist wenig plausibel und deutet vielmehr darauf hin, dass entweder die CO-Emissionen ebenfalls einem Jahresgang folgten mit besonders hohen Emissionen im Frühling und niedrigen Emissionen im Sommer 2013, oder aber dass die in den Regressionen reflektierten Emissionsquellen von Jahreszeit zu Jahreszeit aufgrund des meteorologischen Transports schwanken.

Für die Station Jungfraujoch, die grösstenteils von Emissionen ausserhalb der Schweiz beeinflusst wird, ergab sich im Mittel eine ähnliche Steigung (1.2), während die Variabilität in den einzelnen Jahreszeiten geringer ausfiel und das grösste Verhältnis im Herbst beobachtet wurde. Die aus den JFJ Daten bestimmten mittleren CH₄ Emissionen von 142 Gg/yr fallen deutlich geringer aus als die rapportierten und auch als die im HALCIM-5 Bericht aus JFJ Daten bestimmten von 220 Gg/yr (Reimann et al., 2014). Dies ist auf die Selektion von Messperioden am JFJ zurückzuführen, die repräsentativ für die Schweizer Emissionen sind. Eine solche Auswahl wurde hier nicht durchgeführt.

An der Station Gimmiz lag das ermittelte Immissionsverhältnis ganzjährig über dem Wert der Schweizer Emissionsinventare, wobei die maximale Steigung und damit maximale  $CH_4$  Emission im Sommer bei geringerer Korrelation beobachtet wurde. Grössere  $CH_4/CO$  Verhältnisse in Gimmiz lassen darauf schliessen, dass der Standort, wie bereits vermutet, von lokalen  $CH_4$  Quellen stark beeinflusst wird.

Das Frühjahr 2013 war von einer recht speziellen Wetterlage dominiert, die über lange Perioden kontinentale Kaltluft von Osteuropa in Richtung Schweiz geführt hat. Die geringeren Immissionsverhältnisse im Frühjahr, die überproportional grosse CO Emissionen suggerieren, können daher einerseits durch eine verlängerte Heizperiode oder vermehrte Verwendung von Holz als Brennstoff, und andererseits durch die konstante Advektion osteuropäischer Luftmassen, die einem anderen Emissionsverhältnis ausgesetzt waren, verursacht sein. In Abschnitt 5.8 werden die hier ermittelten Immissionsverhältnisse mit den aus Inversionsresultaten zu erwartenden verglichen.

	Alle	DJF	MAM	JJA	SON
Korrelationskoeffizient R <sup>2</sup>					
Beromünster	0.71	0.86	0.84	0.52	0.74
Lägern-Hochwacht	0.71	0.88	0.80	0.54	0.68
Jungfraujoch	0.71	0.92	0.85	0.35	0.86
Gimmiz	0.51	0.70	0.51	0.39	0.56
Immissionsverhältnis (ppb/ppb);	Inventar: 1	.73			
Beromünster	1.21	1.47	0.96	2.02	1.48
Lägern-Hochwacht	1.20	1.26	0.94	1.89	1.42
Jungfraujoch	1.20	1.16	1.21	0.99	1.49
Gimmiz	2.11	1.82	1.81	4.75	2.74
CH₄ Emissionen (Gg/yr)					
Beromünster	144±15	174±18	114±12	241±26	176±19
Lägern-Hochwacht	143±15	151±16	112±12	225±24	169±18
Jungfraujoch	142±14	138±14	144±15	118±13	178±19
Gimmiz	252±26	216±23	216±23	566±61	326±35

Tabelle 2: Aus der Regressionsanalyse ermittelte Korrelationskoeffizienten, Immissionsverhältnisse und CH<sub>4</sub> Emissionen für die einzelnen CarboCount-CH Standorte. Unsicherheiten bezeichnen 1-σ Konfidenzintervalle.

# 4.3 Datenfilterung für Emissions-Inversion

Wie im Abschnitt 3.1 besprochen weisen die Stationen Früebüel und Gimmiz potentielle lokale Quellen auf, deren Einfluss auf die Messungen von den hier verwendeten Transportmodellen nicht oder nur unvollständig wiedergegeben werden kann. Ein Einbeziehen dieser lokal verunreinigten Messungen in die Emissionsbestimmung könnte zu fehlerhaften Resultaten führen. Daher sollten diese Daten, wenn möglich, vor der Verwendung im Inversionssystem gefiltert werden.

Eine Möglichkeit, lokal verschmutzte Situationen an einer der beiden Zielstationen zu erkennen, ist der Vergleich mit einer nicht lokal beeinflussten Station. In diesem Fall wurde ein Vergleich mit den Messungen in Beromünster (212 m ü.G.) durchgeführt. Dazu wurde die Differenz zwischen allen stündlichen Daten der jeweiligen Zielstation und Beromünster berechnet und nach der an der Zielstation vorherrschenden Windrichtung und -geschwindigkeit aggregiert (Abbildung 13). Grundsätzlich waren die Differenzen am grössten für kleine Windgeschwindigkeiten. Dies entspricht der Erwartung, dass lokale Emissionen in diesen Situationen am langsamsten verdünnt werden und daher einen grossen Einfluss auf die Zielstation haben können.

Weiterhin ergab sich für Früebüel ein eindeutiger Verschmutzungssektor für Windrichtungen zwischen 135° und 195°. Diese Richtung entspricht in etwa der Lage des nächst gelegenen landwirtschaftlichen Betriebs und zeigt, dass dessen Emissionen nicht vernachlässigbar sind. Ausserdem auffällig waren die Situationen mit hohen Windgeschwindigkeiten und einem Windsektor von 120° bis 165°. Diese Situationen repräsentieren Süd-Föhnwetterlagen, die zwar die Station Früebüel beeinflussen aber nicht Beromünster (Bamberger et al., 2015). Südföhn ist mit absteigenden Luftmassen verbunden, die geringere Methankonzentrationen aufweisen können. Das Transportmodell sollte in der Lage sein, die Föhnlagen richtig wiederzugeben. Daher wurden für die Station Früebüel lediglich die  $CH_4$  Daten im verschmutzten Sektor und für Windgeschwindigkeiten kleiner 3 m/s gefiltert und nicht in der Inversion verwendet.

Für Gimmiz ergeben sich deutlich grössere Differenzen beim Vergleich mit Beromünster. Auch hier sind die Differenzen für kleine Windgeschwindigkeiten am grössten. Ausserdem lässt sich ein stärker belasteter Windsektor von ca. 90° bis 150° erkennen. Dies entspricht einer Advektion von der benachbarten Ortschaft Aarberg und könnte auf den Einfluss der dortigen Zuckerfabrik und des Kompostwerks hinweisen. Den in unmittelbarer Nähe gelegenen landwirtschaftlichen Betrieb (Richtung 15°) ist in der Analyse kaum erkennbar. Dies könnte daran liegen, dass die lokalen Emissionen bei der kurzen Transportdistanz nicht die Höhe des Einlasses von 32 m über Grund erreichen, zumindest nicht nachts, wenn die höchsten Konzentrationen gemessen werden. Ein anderes Bild ergab sich für einen Vergleich von CO zwischen Gimmiz und Beromünster (nicht gezeigt). In diesem liess sich die Lage des landwirtschaftlichen Betriebs eindeutig erkennen. Im Gegensatz zum CH<sub>4</sub> entstammen die CO Emissionen wohl einer Feuerung und werden auf Dachhöhe und mit positivem Auftrieb entlassen, so dass sie den Einlass erreichen können. Grundsätzlich waren in Gimmiz die CH<sub>4</sub> Differenzen für kleine Windgeschwindigkeiten sehr gross, so dass neben eines Filters für den stark belasteten Sektor auch alle CH<sub>4</sub> Messungen mit gleichzeitigen Windgeschwindigkeiten < 2 m/s nicht für die Inversion verwendet wurden.



Abbildung 13: Differenzen in der beobachteten Methan-Konzentration zwischen den Stationen (links) Früebüel und (rechts) Gimmiz und der Referenz Beromünster. Die Differenzen werden für verschiedene Windrichtungen und - geschwindigkeiten an der jeweiligen Zielstation gezeigt. Die Farbskalen unterscheiden sich für beide Zielstationen.

# 5 Abschätzung der Schweizer Methanemissionen mit Inversionsrechnungen

Im Folgenden werden die Ergebnisse der Inversions-Rechnungen präsentiert: zuerst detailliert am Beispiel der sogenannten Basis-Inversion und dann mit Fokus auf die Schweizer Emissionstotale für verschiedene Sensitivitätstests. Dabei stellt die Basis-Inversion nicht notwendigerweise das wahrscheinlichste Ergebnis dar, sondern dient vielmehr als Ausgangspunkt, um die Sensitivität der Ergebnisse gegenüber einzelnen Parametern und Techniken des Inversionssystems zu testen.

## 5.1 Basis-Inversion

In der Basis-Inversion wurden die Beobachtungen der Stationen Beromünster, Lägern-Hochwacht, Schauinsland und Jungfraujoch verwendet, während die der Stationen Gimmiz und Früebüel lediglich zur Validierung herangezogen wurden. Die a-priori Emissionen wurden aus der räumlichen Kombination des Schweizer CH<sub>4</sub> Inventars, wie es von Hiller et al. (2014) beschrieben wurde (MAIOLICA), und dem Europäischen TNO/MACC Inventar (Kuenen et al., 2014) gebildet. Dabei wurden die Inventare auf die gemeldeten landesweiten Emissionen für das Jahr 2011 skaliert, die im Jahr 2013 rapportiert wurden (178 Gg/yr für die Schweiz). Für die Schweiz ergaben sich daraus auf dem verwendeten Inversionsgitter a-priori Emissionen von 183 Gg/yr. Die Differenz von 3-4 Gg/yr (oder 2 %) zu den Angaben in Hiller et al. (2014) lassen sich durch die Verwendung des reduzierten Inversionsgitters erklären. Dies kann dazu führen, dass die Emissionen einer Gitterzelle, die in einer Grenzregion liegt, fehlerhaft auf die angrenzenden Länder aufgeteilt werden. Als CH<sub>4</sub> Basislinie wurde für alle Stationen die aus den Messungen am Jungfraujoch bestimmte Basislinie verwendet und separat für jede Station in der Inversion angepasst. Die Standardparameter zur Konstruktion der Kovarianzmatrizen sind die in Abschnitt 3.3.3 beschriebenen. Ihre Werte für die Basis- und alle anderen Inversionen sind in Tabelle 3 in Abschnitt 5.6 aufgeführt.

Abbildung 14 zeigt die a-priori CH<sub>4</sub> Emissionen für die Schweiz und das benachbarte Umland, wie sie im Inversionsgitter abgebildet sind. Die grössten Emissionen sind in den stark durch Viehzucht dominierten Regionen des Kantons Luzern und in der Bodenseeregion der Kantone Thurgau und St. Gallen zu erkennen. Die kleinsten Emissionen werden in den hochalpinen Regionen erwartet, während moderate Emissionen für den Jura erkennbar sind. Ausserhalb der Schweiz sind grosse Emissionen im süd-westlichen Bayern sowie in der Po-Ebene zu erwarten.



Abbildung 14: A-priori (oben links) und a-posteriori (oben rechts) Flüsse für die Basis-Inversion mit tiefen Starthöhen "low". Differenz zwischen a-posteriori und a-priori Emissionen: absolut (unten links) und relativ (unten rechts).

Die mit den a-priori Emissionen bestimmten Zeitserien der CH<sub>4</sub> Molfraktionen an den Messstandorten sind in Abbildung 15 als rote Linien zusammen mit den Beobachtungen (schwarze Linien) dargestellt. Während die Simulation häufig den beobachteten Variationen folgte, lag sie meist etwas tiefer als die Messung selbst. Dies ist besonders auffällig während langer Perioden mit erhöhten Konzentrationen im Frühling 2013 und an den Stationen Beromünster und Lägern-Hochwacht. Für die Station Schauinsland war die Übereinstimmung grundsätzlich etwas besser als an den anderen Stationen. Am Jungfraujoch war die beobachtete Variabilität deutlich reduziert und die Basislinie im Gegensatz zu den anderen Stationen näher beim Niveau der gemessenen Daten. Daher erscheinen einige der Verschmutzungsepisoden in der a-priori Simulation leicht überschätzt.

Die Übereinstimmung mit den Beobachtungen verbesserte sich, wenn statt der a-priori Emissionen die aus der Inversion gewonnenen a-posteriori Emissionen im Modell verwendet wurden (blaue Linien in Abbildung 15). Grundsätzlich lagen die simulierten a-posteriori Molfraktionen näher an den Beobachtungen. Dies ist zum Teil auch auf eine Anpassung der Basislinien zurückzuführen (glatte Linien in Abbildung 15). Diese waren an den Stationen Beromünster, Lägern-Hochwacht und Schauinsland gegenüber den a-priori Basislinien deutlich erhöht, insbesondere während längerer Verschmutzungsperioden. Am Jungfraujoch hingegen war die a-posteriori Basislinie grösstenteils kleiner als die a-priori Abschätzung.

Die Güte der simulierten Zeitserien wird in Abbildung 16 anhand von Korrelationskoeffizienten und RMSE dargestellt. Dabei wird unterschieden zwischen der Korrelation des Gesamtsignals und der Korrelation des Signals über der Basislinie. Es werden jeweils die a-priori Werte den a-posteriori Werten gegenübergestellt. Die Werte für R<sup>2</sup> lagen vor der Inversion zwischen 0.2 und 0.5 für die Korrelation über der Basislinie. Die Korrelationen für das Gesamtsignal waren nur leicht höher. Gimmiz wies dabei die höchste Korrelation auf und Jungfraujoch die geringste. Im Gegenzug wies aber Gimmiz den grössten RMSE und Jungfraujoch den kleinsten auf. Grundsätzlich verbesserten sich die Korrelationen zwischen Simulation und Beobachtung nach der Inversion an allen Stationen auf Werte von R<sup>2</sup> bis 0.7. Eine Ausnahme bildet die Station Gimmiz, deren Beobachtungen allerdings auch nicht in der Inversion verwendet wurden. Generell fiel die Verbesserung der Korrelation für das Gesamtsignal grösser aus als für die Korrelation oberhalb der Basislinie. Die höchste Korrelation nach Inversion wies die Station Schauinsland aus, gefolgt von den weiteren in der Inversion verwendeten Stationen. Die relative Reduktion des RMSE fiel für die Station Lägern-Hochwacht am grössten aus. Für den Standort Früebüel, dessen Daten nicht in der Inversion verwendet wurden, konnte nach der Inversion sowohl eine leicht verbesserte Korrelation als auch ein reduzierter RMSE erzielt werden, was die Konsistenz des ermittelten Emissionsfelds bestätigt. Für Gimmiz konnte dieses Ergebnis nicht bestätigt werden, was wiederum den Verdacht unterstützt, dass die Messungen in Gimmiz stark von lokalen Emissionen beeinflusst werden, die nicht von den anderen Stationen eingegrenzt werden können.



Abbildung 15: Beobachtete (schwarz) und simulierte (a-priori: rot; a-posteriori: blau) CH<sub>4</sub> Zeitserien in der Basis-Inversion an den in der Inversion verwendeten Stationen. Die verwendeten Basislinien der Simulation sind ebenfalls gegeben (a-priori: hellrot; a-posteriori: hellblau). Die y-Achsen wurden für jede Station separat gesetzt.

Neben Korrelationskoeffizient und RMSE lässt sich aus R und der gemessen,  $\sigma_o$ , sowie simulierten,  $\sigma_m$ , Variabilität ein einziger Parameter bestimmen, mit dem sich die Simulationsgüte bewerten lässt (Taylor, 2001)

$$S = \frac{4(1+R)}{\left(\sigma_f + 1/\sigma_f\right)^2 (1+R_0)},$$
(13)

wobei  $\sigma_f$  die simulierte Variabilität dividiert durch die gemessene darstellt.  $R_0$  ist eine Abschätzung der maximal erreichbaren Korrelation. Diese wird durch diverse Faktoren wie Messgenauigkeit oder Repräsentativität bestimmt. Hier wurde  $R_0$  auf einen Wert von 0.9 gesetzt. S nimmt für eine "perfekte" Simulation mit einer Korrelation von 0.9 und  $\sigma_f$ =1 den Wert 1 an. Für schlechtere Modellleistungen liegt der Wert von S unter 1. Für die Basis-Inversion lagen die a-posteriori Werte von S zwischen 0.78 und 0.91 für die verwendeten Stationen und bei 0.77 und 0.5 für die Validierungsstationen Früebüel und Gimmiz.

Tabelle 4 gibt die a-posteriori Werte für S für alle Sensitivitätsinversionen an. Generell bewegte sich die Modellleistung für alle Sensitivitätsinversionen in ähnlichen Bereichen wie für die Basis-Inversion. Die Modellleistung allein kann auch nicht als Kriterium für eine korrekte Bestimmung der a-posteriori Emissionen herangezogen werden, da für Inversionen, in denen grosse Anpassungen des Zustandsvektors erlaubt werden, sehr gute Modellleistungen erzielt werden können, ohne dass ein realistisches Emissionsfeld gefunden wird. Der a-posteriori Zustand der CH<sub>4</sub> Emissionen und deren Änderungen gegenüber des a-priori Zustands sind in Abbildung 14 dargestellt. Für letztere wurde die Differenz a-posteriori minus a-priori aufgetragen, d.h. positive Werte (gelb bis rot) kennzeichnen Regionen, in denen die Inversion erhöhte Emissionen fordert, und negative Werte zeigen Regionen mit reduzierten Emissionen. Die grössten absoluten Änderungen wurden für die Region süd-westlich der Station Beromünster ermittelt. In dieser Region mit sehr hohen a-priori Emissionen reduzieren sich die Emissionen um 10 - 20 %. Weitere Reduktionen fanden sich auch östlich der Station Lägern-Hochwacht im Kanton Thurgau und insgesamt in der Westschweiz. Dagegen wurden höhere Emissionen aus Norditalien verlangte die Inversion eine Erhöhung. Allerdings waren die Messungen im Schweizer Mittelland nur wenig sensitiv gegenüber den italienischen Emissionen, so dass diese Änderungen mit einer grösseren Unsicherheit behaftet blieben. Relativ gesehen wurden die grössten Emissionssteigerungen von bis zu 30 % im Appenzell und angrenzenden Vorarlberg ermittelt, während die grössten relativen Reduktionen im südlichen Schwarzwald auftraten. Für das Schweizer Emissionstotal ergab sich eine geringe Reduktion auf  $179\pm7$  Gg/yr ( $1\sigma$ ), was sich nicht signifikant (95% Vertrauensintervall, zweiseitiger Welch t-Test) vom a-priori Wert unterscheidet.



Abbildung 16: Validierungsparameter der simulierten Zeitserien für verschiedene Stationen: prior (schraffiert) und posterior (ausgefüllt). Korrelationskoeffizient für Signal über Hintergrund (links oben), Korrelationskoeffizient (rechts oben), normalisierter RMSE (links unten) und Reduktion des RMSE vom prior zum posterior (rechts unten).

Neben der verbesserten Modellleistung an den Stationen gibt auch das Betrachten der Unsicherheitsreduktion der a-posteriori Emissionen gegenüber den a-priori Emissionen Aufschluss über die Güte der Inversionsrechnung. Diese Unsicherheitsreduktion ist für die Basis-Inversion in Abbildung 17 dargestellt. Grundsätzlich war die Unsicherheitsreduktion in der Nähe der in der Inversion verwendeten Stationen gross und verringerte sich mit zunehmendem Abstand und daher abnehmender Emissionssensitivität. Die grössten Reduktionen wurden in der Region um die Station Beromünster erzielt und insgesamt im Kanton Luzern, wo auch die Emissionsreduktionen am grössten waren. Im Gegensatz dazu verringerten sich die Emissionsunsicherheiten im östlichen St. Gallen/Appenzell, wo die grössten Emissionssteigerungen ermittelt wurden, nur geringfügig. Daher können die ermittelten Emissionssteigerungen dort auch als weniger sicher angesehen werden als die Reduktionen im Kanton Luzern. Ähnliches gilt auch für die Emissionsreduktionen im westlichen Thurgau. Auch diese blieben mit einer relativ grossen Unsicherheit behaftet.

Wurden für die Inversion die höher gelegenen Modellstartpunkte verwendet (siehe Abschnitt 3.2), ergaben sich generell sehr ähnliche Muster in der räumlichen Verteilung der Emissionsänderungen (nicht gezeigt). Insgesamt lagen die Schweizer CH<sub>4</sub> Emissionen in diesem Fall allerdings höher als für die Basis-Inversion mit niedriger Starthöhe: 195 $\pm$ 7 Gg/yr (1 $\sigma$ ). Auch wenn dieser Wert 12 bzw. 16 Gg/yr über dem a-priori und dem Wert der Basis-Inversion liegt, sind diese Unterschiede wiederum nicht signifikant (95% Vertrauensintervall).



Abbildung 17: Prozentuale Änderung der Unsicherheit der CH<sub>4</sub> Emissionen vom a-priori zum a-posteriori Zustand.

## 5.2 Saisonalität der Emissionen

Bei der im letzten Abschnitt beschriebenen inversen Bestimmung der CH<sub>4</sub> Emissionen wurde angenommen, dass die CH<sub>4</sub> Emissionen zeitlich konstant erfolgen. Dies wurde auch aus den analysierten Tagesgängen der beobachteten CH<sub>4</sub> Molfraktionen (Abschnitt 4.1) für den Tagesgang der CH<sub>4</sub> Emissionen geschlossen. Allerdings bleibt die Frage, ob sich die CH<sub>4</sub> Emissionen im Jahresgang ändern. Gründe dafür könnten unter anderem die Temperaturabhängigkeit der CH<sub>4</sub> Produktion aus Tierausscheidungen (Gülle und Mist), die jahreszeitlichen Schwankungen des Erdgasverbrauchs und die sommerliche Verschiebung eines Teil des Viehbestands auf hochgelegene Alpen sein (Hiller et al., 2014).

Für die Berechnung der CH<sub>4</sub> Emissionen pro Jahreszeit wurde der Zustandsvektor so erweitert, dass er aus einem Satz unbekannter Emissionen für jede Jahreszeit gebildet wird. Als a-priori wurden dieselben Emissionen in jeder Jahreszeit angenommen. Die Kovarianzmatrix **B** wurde um Nebenterme erweitert, die die Korrelation zwischen den Unsicherheiten der Emissionen einer Gitterzelle zu verschiedenen Jahreszeiten beschreiben. Diese wurden erneut über eine abfallende Exponentialfunktion mit einer Zeitkonstante beschrieben, die auf einen Wert von 90 Tagen gesetzt wurde. Der Nachteil bei der Bestimmung von jahreszeitlich variablen Emissionen ist, dass sich die Anzahl Unbekannter im System vervierfacht, ohne dass weitere Messungen zur Verfügung stehen. Damit verbleiben auch die Unsicherheiten für die a-posteriori Emissionen der einzelnen Jahreszeiten grösser als die der Jahresmittel.

In Abbildung 18 sind die Emissionsänderungen gegenüber dem a-priori für alle Jahreszeiten dargestellt. Deutliche Unterschiede sind zwischen den Jahreszeiten erkennbar. Während im Winter allgemein und besonders in den viehreichen Regionen des Mittellandes eine Reduktion der Emissionen ermittelt wurde, lagen die Emissionen in den anderen Jahreszeiten eher höher als im a-priori. Dabei traten zu verschiedenen Jahreszeiten durchaus verschiedene Muster auf. Im Frühling und auch Sommer wurden erhöhte Emissionen eher für die Ostschweiz aber auch für den Kanton Luzern ermittelt, während Richtung Westen eher Reduktionen dominierten. Im Herbst dagegen waren Reduktionen erneut südlich von Beromünster und östlich von Lägern-Hochwacht erkennbar, während Anstiege erneut im Appenzell aber auch im zentralen Mittelland gesehen wurden. Der jahreszeitliche Verlauf der totalen Schweizer CH<sub>4</sub> Emissionen ist in Abbildung 19 gezeigt. Wie aus den räumlichen Verteilungen bereits erkennbar, bestätigt sich, dass die niedrigsten Emissionen im Winter auftraten und unter den a-priori Emissionen lagen, während für die anderen Jahreszeiten Gesamtemissionen ähnlich zu den apriori Emissionen bestimmt wurden. Dabei waren die Sommeremissionen leicht tiefer als die im Frühling und Herbst.



Abbildung 18: Absolute Differenzen zwischen a-posteriori und a-priori Emissionen. Winter (oben links), Frühling (oben rechts), Sommer (unten links), Herbst (unten links).



Abbildung 19: Totale Schweizer Methanemissionen nach Jahreszeit für die Inversion mit niedrigen (links) und hohen (rechts) Starthöhen. A-priori Werte und Unsicherheiten (2 $\sigma$ ) sind als hellgrüner Balken und a-posteriori Werte als dunkelgrüner Balken gezeigt.

Die Gesamtjahresemissionen für diese Inversion lagen mit 185±6.5 Gg/yr nur unwesentlich höher als für die Basis-Inversion. Die Emissionen für den Winter wurden auf 152±10 Gg/yr bestimmt und waren damit rund 18 % niedriger als das Jahresmittel. Da die grösste winterliche Reduktion in den Gebieten mit hoher Viehdichte auftrat, kann als wahrscheinlichste Ursache die Reduktion der CH<sub>4</sub> Emissionen aus der Landwirtschaft angesehen werden. Verwendet man statt der a-posteriori Emissionen lediglich die a-priori Emissionen aus der Landwirtschaft als Referenz (150 Gg/yr), würde sich eine winterliche Abweichung vom Jahresmittel von rund 22 % ergeben. Dies liegt im Rahmen dessen, was von Gao et al. (2011) als jahreszeitliche Schwankung bei der Vermessung der CH<sub>4</sub> Emissionen eines Milchkuhbetriebs im nördlichen China angegeben wurde. Einen wichtigen Beitrag zu diesen Schwankungen könnten Emissionen aus Mist- und Gülleaufbewahrung liefern, welche gemäss Zeitz et al. (2012) bei mittleren Schweizer Wintertemperaturen reduziert wenn nicht sogar vernachlässigbar sein dürften. Ähnlich wird dies von dem Modell, das vom BAFU zur Berechnung der Emissionen aus der Gülleaufbewahrung verwendet wird, wiedergegeben. Dort reduzieren sich die winterlichen Emissionen um ca. 50 % im Vergleich zum Jahresmittel (FOEN, 2015a). Weiterhin können zeitliche Variationen in den Emissionen der Nutztierhaltung aufgrund variierender Produktivität insbesondere der Milchkühe auftreten. Durch die in der Schweiz dominierende Wahl des Abkalbedatums im Frühjahr erreichen die Milchkühe Ihre höchste Produktivität im Frühjahr/Sommer zum Zeitpunkt der höchsten Futterverfügbarkeit. Die CH<sub>4</sub> Emissionen folgen direkt der Produktivität und sollten daher ebenfalls einen Jahresgang aufweisen, der im Winter ein Minimum erreicht (FOEN, 2015a). Diese Überlegungen decken sich gut mit dem aus der Inversion berechneten Jahresgang, letztere sollten allerdings für ein weiteres Jahr überprüft werden, um mögliche Jahr-zu-Jahr Variabilität zu erfassen.

Im Frühjahr/Sommer war ein Emissionsanstieg im voralpinen Gebiet und besonders in der Region des Zugerbergs mit der Station Früebüel sichtbar. Auch dieser Anstieg scheint plausibel, da sich die Modellleistung für die Station Früebüel im Vergleich zum a-priori und auch zum a-posteriori der Basis-Inversion deutlich verbesserte. Für die höheren Starthöhen der Transportsimulation ergab sich ein ähnlicher, nicht ganz so ausgeprägter Jahresgang der CH<sub>4</sub> Emissionen (Abbildung 19). Die Gesamtemissionen lagen bei 197±7 Gg/yr während die winterlichen Emissionen lediglich bei 171±10 Gg/yr lagen.

# 5.3 Sensitivität gegenüber gewählten Beobachtungsdaten

In diesem Abschnitt wird untersucht, inwieweit das Ergebnis der Basis-Inversion von der Auswahl der verwendeten Messstationen in der Inversion abhängt. Dafür wurden verschiedene Inversionsrechnungen mit Kombinationen von Stationen und auch Einzelstationen durchgeführt (siehe

Tabelle 4). Das Inversionsgitter wurde jeweils an die gewählten Messstationen angepasst, so dass kleine Gitterzellen nur nahe der an der Inversion teilnehmenden Stationen auftraten.

Für eine detaillierte Diskussion der verschiedenen ermittelten Emissionsmuster bleibt an dieser Stelle nicht genug Raum. Es sei lediglich darauf hingewiesen, dass die auch in der Basis-Inversion gesehene Reduktion der Emissionen südwestlich von Beromünster in so gut wie allen Sensitivitätsinversionen bestätigt wurde. Die Reduktion im westlichen Thurgau trat dagegen nur in den Inversionen auf, bei denen die Station Lägern-Hochwacht verwendet wurde. Gleiches gilt für den Anstieg im östlichen St. Gallen und Appenzell, der nur bei Einbezug der Station Beromünster auftrat. Des Weiteren ist erkennbar, dass das Einbinden der höher gelegenen Stationen Jungfraujoch und Schauinsland zu weniger ausgedehnten Emissionsänderungen in mittlerer (100 – 500 km) Entfernung von den Mittelland-Stationen führt. Diese teils grossen Emissionsänderungen können durch "Abschattungseffekte" hervorgerufen werden, die in Regionen auftreten, die "hinter" anderen Emissionsquellen liegen und für die die Messungen immer nur dann sensitiv sind, wenn auch diese näher gelegene Emissionsquelle "gesehen" wird. Der Einbezug von Jungfraujoch und Schauinsland scheint zu einer besseren Eingrenzung der Emissionen dieser entfernten Regionen zu führen.

Die totalen Schweizer CH<sub>4</sub> Emissionen für die verschiedenen Stationskombinationen lagen zwischen 179.0 $\pm$ 7.0 Gg/yr für die Basis-Inversion (low) und 229.6 $\pm$ 11 Gg/yr für die nur Lägern-Hochwacht verwendende Inversion (high LAE, Abbildung 20 und

Tabelle 4). Dass die Inversion, die nur Lägern-Hochwacht verwendet, so hohe Emissionswerte lieferte, liegt an dem oben beschriebenen Problem der Abschattungseffekte. In diesem Fall sind die Emissionsänderungen in Richtung Westen nicht gut eingegrenzt. Ein starker Emissionsanstieg im gesamten westlichen Mittelland führt zu den stark erhöhten Gesamtemissionen, während das Emissionsmuster in Stationsnähe ähnlich bleibt wie in der Basis-Inversion (Reduktion in den Kantonen Luzern und Thurgau). Ebenfalls hohe Emissionen wurden für die Inversion mit allen Stationen ermittelt. In diesem Fall ist der Anstieg auf den Einfluss der Station Gimmiz zurückzuführen, deren hohe gemessene Molfraktionen zu einem generellen Anstieg der Emissionen im westlichen Mittelland führten. Wiederum war dieser Anstieg räumlich nicht besonders gut abgegrenzt. Es ist höchst wahrscheinlich, dass die oben erwähnten lokalen Emissionen in der Nähe von Gimmiz fälschlicherweise auf eine grössere Region verteilt werden. Dieses Umverteilen in Regionen, zu denen die Messungen weniger sensitiv sind, erfordert dann letztlich einen Anstieg der Gesamtemission, um die gemessenen Molfraktionen zu erreichen.



Abbildung 20: Schweizer CH<sub>4</sub> Gesamtemissionen (a-priori: grün; a-posteriori: orange) für Inversionen mit verschiedenen ausgewählten Messdaten. Die Unsicherheitsbalken geben das 2σ Konfidenzintervall an. Links sind die Inversionsergebnisse für niedrige und rechts für hohe Starthöhen im Transportmodell gezeigt.

# 5.4 Sensitivität gegenüber den gewählten a-priori Emissionen

Neben dem räumlich expliziten Inventar von Hiller et al. (2014) (MAIOLICA) bestehen weitere europäische Inventare der CH<sub>4</sub> Emissionen. Diese basieren teilweise auf den Ländertotalen, die an UNFCCC gemeldet werden (TNO/MACC, Kuenen et al., 2014), aber auch auf unabhängigen Daten (EDGAR http://edgar.jrc.ec.europa.eu/index.php). Ausserdem werden in beiden genannten Fällen für die räumliche Aufteilung Aktivitätsdaten verwendet, die nicht mit denen in Hiller et al. (2014) übereinstimmen. Die daraus resultierenden Unterschiede in den totalen Emissionen und der räumlichen Aufteilung wurden ebenfalls bei Hiller et al. (2014) beschrieben. Als wichtigste Unterschiede seien hier die insgesamt erhöhten Schweizer Emissionen in EDGAR (Version 4.2 FT 2010, Referenzjahr 2010) von 228 Gg/yr und deren stärkere Allokation in urbane Regionen genannt. Letzteres ist einerseits auf höhere Gasverlustraten in EDGAR aber auch auf eine stärkere Allokation der landwirtschaftlichen Emissionen entlang der Bevölkerungsdichte zurückzuführen. Die Differenzen zwischen dem TNO/MACC und dem MAIOLICA Inventar sind weniger offensichtlich und die Totale unterscheiden sich lediglich um 5 Gg/yr.

In Abbildung 21 sind die Differenzen zwischen a-priori und a-posteriori Emissionen für Inversionen mit EDGAR bzw. TNO a-priori dargestellt. Während das Muster für die TNO Inversion sehr ähnlich zur Basis-Inversion war, zeigten sich für die EDGAR Inversion grössere Unterschiede. Insbesondere wurden die Emissionen in urbanen Regionen (Basel, Zürich, aber auch Luzern, Bern und Genf) deutlicher reduziert als in der Basis-Inversion. Einzig der Anstieg im östlichen St. Gallen und Appenzell blieb auch in der EDGAR Inversion erhalten. Die Emissionstotale im a-posteriori waren sehr ähnlich zu denen in der Basis-Inversion: 184.3±7.9 Gg/yr für EDGAR und 180.3±7.2 Gg/yr für TNO (siehe Abbildung 23 und

Tabelle 4), was darauf schliessen lässt, dass das Ergebnis stärker durch die Messungen als durch das a-priori bestimmt ist.



Abbildung 21: Absolute Differenz zwischen a-posteriori und a-priori Flüssen für Inversion mit EDGAR a-priori (links) und TNO a-priori (rechts) für niedrige Starthöhen.



Abbildung 22: A-posteriori Emissionen (links) und Differenz zwischen a-posteriori und a-priori Emissionen (rechts) für die Inversion mit homogenen a-priori und niedriger Starthöhe (low homo).

Zusätzlich zu den räumlichen expliziten Inventaren wurde auch eine Inversion getestet, die ein homogenes Emissionsfeld als a-priori verwendet. Dazu wurde ein mittlerer Emissionsfluss gewählt, so dass die Emissionen im gesamten Modellgebiet denen des a-prioris der Basis-Inversion entsprechen. Für die Schweiz ergaben sich daraus deutlich erhöhte a-priori Emissionen von 257±42 Gg/yr. Die Unsicherheit des a-priori wurde bei dieser Inversion verdoppelt, so dass sich eine Unsicherheit von 32 % für das Schweizer Emissionstotal ergab. Grundsätzlich war auch die Inversion mit homogenen a-priori in der Lage, einige Details der räumlichen Emissionsverteilung zu rekonstruieren. Es wurden geringere a-posteriori Flüsse über den Alpen, dem westlichen Mittelland und den angrenzenden Regionen Frankreichs und Südwestdeutschlands bestimmt (Abbildung 22). Hingegen wurden höhere Emissionen für das zentrale und östliche Mittelland ermittelt. Die Schweizer Emissionen verblieben aufgrund des wesentlich höheren a-priori Werts auch im a-posteriori deutlich über denen in der Basis-Inversion ermittelten Werten: 216.0±15 Gg/yr und 246±15 Gg/yr für niedrige bzw. hohe Starthöhen.



Abbildung 23: Schweizer CH<sub>4</sub> Gesamtemissionen (a-priori: grün; a-posteriori: orange) für Inversionen mit verschiedene apriori Emissionen.

# 5.5 Sensitivität gegenüber Basiskonzentrationsbehandlung

In diesem Abschnitt soll getestet werden, inwieweit die in Abschnitt 3.3.1 vorgestellte Behandlung des CH<sub>4</sub>-Basiswerts in der Inversion einen Einfluss auf die Emissionsergebnisse hat. Dazu wurden zwei weitere Techniken implementiert, um den Basiswert in der Inversion abzuschätzen. Erstens wurde versucht, insbesondere kurzfristige Schwankungen des Basiswerts besser zu berücksichtigen, indem nicht nur ein Wert pro Station und zeitlicher Stützstelle geschätzt wird, sondern für jede Station je ein Wert für den westlichen und östlichen Rand des Modellgebiets. Zwischen diesen beiden Werten wird anschliessend räumlich interpoliert, indem man die mittlere Position der Modellpartikel am Ende der Transportsimulation verwendet. Letztere ist nicht nur an den zeitlichen Stützstellen der Basiskonzentrationen verfügbar, sondern zu jedem Modellzeitpunkt. Somit können kurzfristige Schwankungen in der Basislinie, z.B. wenn die Advektionsrichtung innerhalb weniger Stunden von Ost auf West wechselt, besser beschrieben werden. Diese Methode wird im Folgenden mit "bgLoc" gekennzeichnet. Zweitens wurde eine Methode implementiert, die eine gemeinsame "Basislinie" für alle Stationen bestimmt, diese allerdings aufgelöst als dreidimensionales Gitter über dem Modellgebiet. Erneut wird die Modellpartikelposition am Ende der Transportsimulation verwendet, um die Sensitivität gegenüber den Gitterboxen dieser Basiskonzentrationen zu ermitteln. Da alle Gitterpunkte des Basisgitters in den Zustandsvektor aufgenommen werden mussten, konnte die Auflösung des Gitters nur sehr grob gewählt werden (3 x 3 x 2 Gitterboxen). Während horizontal das Modellgitter in 3 x 3 Zellen geteilt wurde, wurde in der Vertikalen lediglich zwischen einer Schicht bis 1000 m über Modellgrund und einer darüber unterschieden. 1000 m wurden als Approximation des Jahresmittels der nachmittäglichen Mischungsschichthöhe gewählt. Auch zeitlich musste die Auflösung der Stützstellen von 5 Tagen für die Basis-Inversion auf 15 Tage reduziert werden, um die Anzahl Parameter im Zustandsvektor beherrschbar zu halten. Diese dreidimensionale Basiskonzentrationsbehandlung wurde mit "bgGrid" bezeichnet.

Erneut ergaben sich für die Inversionsläufe mit geänderter Basiskonzentrationsbehandlung ähnliche räumliche Emissionsänderungen wie in der Basis-Inversion. Insbesondere die "bgLoc" Methode führte zu einer verbesserten Modellleistung an den Stationen, welche grösstenteils durch eine Verbesserung des Hintergrunds erzielt wurde. Die Schweizer CH<sub>4</sub> Emissionen änderten sich nur leicht für die "bgLoc" Methode: 194±7 Gg/yr und 218±7 Gg/yr für niedrige und hohe Starthöhen (Abbildung 24). Für die "bgGrid" Methode wurden allerdings deutlich erhöhte Emissionen in der Schweiz ermittelt. Dies könnte teilweise mit der Tatsache zu tun haben, dass die Basiskonzentrationen weiterhin in allen Gitterzellen mit der Jungfraujoch Basislinie initialisiert wurden und für die einzelnen Gitterzellen zu wenig Information für eine angemessene Anpassung der a-priori Werte zu Verfügung stand. Die Initialisierung mit Hilfe einer globalen 3D-Simulation wäre vielversprechender. Allerdings stand eine solche zum Zeitpunkt der Analyse noch nicht zur Verfügung.



Abbildung 24: Schweizer CH<sub>4</sub> Gesamtemissionen (a-priori: grün; a-posteriori: orange) für Inversionen mit verschiedener Basiskonzentrationsbehandlung.

## 5.6 Sensitivität gegenüber gewählter Kovarianzstruktur

Ebenfalls einen grossen Einfluss auf das Inversionsergebnis haben die in Abschnitt 3.3.3 diskutierten Kovarianzmatrizen **B** und **R**. Dieser soll im Folgenden bestimmt werden, indem die Inversionsergebnisse für drei verschiedene Methoden für die Konstruktion von **B** und **R** verglichen werden. Die Parameter, mit denen sich die Kovarianzmatrizen konstruieren lassen, sind ebenfalls in Abschnitt 3.3.3 beschrieben. In der Basis-Inversion wurden die Parameter  $\sigma_{min}$  und  $\sigma_{srr}$  individuell aus den Residuen der a-priori Simulation an jeder Station bestimmt. Die weiteren Parameter wurden festgelegt (siehe Tabelle 3). Die Wahl dieser Parameter basiert lediglich auf Erfahrungswerten. Alternativ wird in der Methode von Stohl et al. (2009) der Parameter  $\sigma_{srr}$  auf 0 gesetzt und  $\sigma_{min}$  aus den RMSE der a-priori Simulationen an den Stationen bestimmt. Auch diese Methode wurde im Folgenden getestet. Erneut wurden alle anderen Parameter fest gewählt (Tabelle 3).

Eine objektive Methode, die Kovarianz-Parameter zu bestimmen, ist die der grössten Wahrscheinlichkeit (maximum likelihood, ML) (Michalak et al., 2005). Für jeden Parametersatz lässt sich berechnen, wie wahrscheinlich es ist, die tatsächlich realisierten Beobachtungen zu erzielen. Der beste Parametersatz ist derjenige, der diese Wahrscheinlichkeit maximiert. Diese Suche läuft auf ein multi-dimensionales Optimierungsproblem heraus und ist rechnerisch sehr aufwendig. Hier wurde eine Schwarmoptimierungsmethode (Zambrano-Bigiarini and Rojas, 2013) verwendet, um den Punkt der grössten Wahrscheinlichkeit für die insgesamt 15 Parameter zu finden, aus denen **B** und **R** konstruiert wurden (Tabelle 3). Die Gefahr bei der ML Methode ist, dass der Optimierungsalgorithmus in einem lokalen Maximum hängen bleibt, statt das globale Maximum zu finden. Die Ergebnisse der Inversionen, die auf der Berechnung von  $\sigma_{min}$  nach Stohl et al. (2009) beruhen, unterscheiden sich nur leicht von denen der Basis-Inversion. Grundsätzlich weisen diese Inversionen allen Messungen einer Station das gleiche Gewicht zu, während in der Basis-Inversion die Messungen mit hohen simulierten apriori Konzentrationen weniger Gewicht bekommen. In der räumlichen Emissionsverteilung zeigt sich, dass in diesem Fall die Emissionsreduktionen in den Kantonen Luzern und Thurgau stärker ausgeprägt waren. Insbesondere entfiel die Region erhöhter Konzentrationen zwischen den Stationen Lägern-Hochwacht und Beromünster. Stattdessen kam es auch hier zu reduzierten Emissionen. Der Anstieg im östlichen St. Gallen und Appenzell blieb nahezu unverändert. Dies gilt für beide Inversionen mit hohen und niedrigen Starthöhen. Deren a-posteriori Emissionen für die Schweiz waren mit 169.3 $\pm$ 7.5 Gg/yr und 197.6 $\pm$ 8.0 Gg/yr konsistent kleiner als in der Basis-Inversion.

Im Vergleich zur Basis-Inversion zeigen die mit Hilfe der ML Methode bestimmten Kovarianz-Parameter für alle Kovarianzkomponenten erhöhte Werte (Tabelle 3). Insbesondere die Unsicherheit der Basislinie, beschrieben über f<sub>B</sub>, war deutlich erhöht. Ausserdem wurden durch die Optimierung grössere Unsicherheiten für die apriori Emissionen bestimmt, die für die Schweiz einer Gesamtunsicherheit von 20 % bzw. 36 % für die Inversion mit niedriger und hoher Starthöhe entsprechen. Weiterhin findet die ML Optimierung im Fall der hohen Starthöhen eine stark vergrösserte horizontale Korrelationslänge der a-priori Unsicherheiten, L=340 km statt 50 km in der Basis-Inversion. Dies führt dazu, dass die a-posteriori Emissionsänderungen in diesem Fall stark geglättet erscheinen und Reduktionen für das gesamte Schweizer Mittelland und Jura ermittelt wurden. Auch der Anstieg im Kanton Appenzell entfällt in dieser Inversion, die von allen Sensitivitätsläufen die niedrigsten Gesamtemissionen aufwies: 157.5±10 Gg/yr. Für die ML Inversion mit niedrigen Starthöhen ergab sich im Vergleich mit der Basis-Inversion eher eine Verstärkung der Emissionsänderungen. Insbesondere waren die Änderungen stärker lokalisiert, was einer kürzeren Korrelationslänge L=19 km entspricht. Grundsätzlich blieb aber das Muster aus der Basis-Inversion erhalten mit Reduktionen im Kanton Luzern und Thurgau und einem Anstieg im östlichen St. Gallen und Appenzell. Auch in dieser Version entfiel der Anstieg zwischen den Stationen Lägern-Hochwacht und Beromünster, stattdessen wurde ein sehr lokaler Anstieg rund um Beromünster ermittelt. Mit Gesamtemissionen von 161.3±12 Gg/yr blieb auch diese Inversion deutlich unter den Werten der Basis-Inversion. Die grossen Differenzen in der Bestimmung der Korrelationslänge L zwischen hoher und niedriger Starthöhe legen nahe, dass dieser Parameter durch die ML Optimierung nicht zuverlässig abgeschätzt werden konnte.

	σ <sub>min</sub> (ppb)				σ <sub>srr</sub> (-)				f <sub>в</sub> (-)				τ <sub>в</sub> (d)	L (km)	σ <sub>ε</sub> (%)
	BEO	LAE	SSL	JFJ	BEO	LAE	SSL	JFJ	BEO	LAE	SSL	JFJ			
Basis-Inversio	on														
low	11	16	11	17	0.53	0.47	0.34	0.36	1	1	1	1	14	50	16
high	22	23	11	17	0.45	0.46	0.35	0.36	1	1	1	1	14	50	16
Stohl															
low	40	41	22	20	0	0	0	0	1	1	1	1	14	50	16
high	41	44	22	20	0	0	0	0	1	1	1	1	14	50	16
Maximum Lil	kelihoo	d (ML)													
low	24	29	22	23	0.81	0.69	0.46	0.88	3.3	7.5	2.4	4.4	24	19	20
high	42	35	20	21	0.60	0.63	0.51	1.22	4.0	4.9	1.9	1.8	17	340	36
Kalman Filter	r Invers	ion													
low	14	14	14	14	0.5	0.5	0.5	0.5	-	-	-	-	-	50	16
high	14	14	14	14	0.5	0.5	0.5	0.5	-	-	-	-	-	50	16

Tabelle 3: Kovarianz-Parameter für die verschiedenen Sensitivitätsinversionen.



Abbildung 25: Schweizer CH<sub>4</sub> Gesamtemissionen (a-priori: grün; a-posteriori: orange) für Inversionen mit verschiedener Kovarianzstruktur.

# 5.7 Sensitivität gegenüber Transportmodell und Inversionsmethode

Entscheidende Komponenten der inversen Emissionsbestimmung sind das verwendete Transportmodell und die verwendete Inversionsmethode selbst. Als unabhängiges Transportmodell wurde deshalb zusätzlich zum FLEXPART-COSMO die Standardversion von FLEXPART angetrieben mit ECMWF Windfeldern verwendet. Die Inversionsergebnisse für das FLEXPART-ECMWF Transportmodell unterscheiden sich nur geringfügig von denen der Basis-Inversion. Auffällig ist, dass die Emissionsreduktionen im Fall von ECMWF in westlicher Richtung nicht auf den Kanton Luzern beschränkt waren, sondern das ganze westliche Mittelland betrafen. Erhalten blieb hingegen der Anstieg im östlichen St. Gallen und Appenzell. Es ist erstaunlich, dass in der komplexen Topographie der Schweiz und unter dem Umstand, dass die FLEXPART-ECMWF Version mit einer deutlich reduzierten horizontalen Auflösung arbeitet (0.2° im Vergleich zu 0.06° in COSMO7), die Inversionsresultate so ähnlich sind. Dies kann als Zeichen für die generelle Güte der Transportsimulation gewertet werden, die sich ja bereits in sehr guten Modellleistungen für die a-priori Simulationen gezeigt hatte. Die Gesamtemissionen aus der ECMWF Inversion für die Schweiz waren leicht geringer als in der Basis-Inversion: 171.1±8.0 Gg/yr und 182.1±7.6 Gg/yr für niedrige und hohe Starthöhen (Abbildung 27).

Neben der hier hauptsächlich verwendeten Bayesischen Inversion wurde auch eine Kalman Filter Inversion gerechnet (für Details siehe Abschnitt 3.3.2). Ähnlich wie die Basis-Inversion ermittelt auch die Kalman Filter Inversion Emissionsreduktionen westlich der Station Beromünster und Emissionsanstiege im östlichen St. Gallen und Appenzell (Abbildung 26). Im Gegensatz zur Basis-Inversion wurden vom Kalman Filter keine Emissionsreduktionen östlich von Lägern-Hochwacht bestimmt. Für die Gesamtschweizer Emissionen lieferte die Kalman Filter Inversion Werte von 193±12 Gg/yr und 226+14 Gg/yr für die niedrigen bzw. hohen Modellstartpunkte (Abbildung 27 und

Tabelle 4). Diese Werte liegen deutlich über denen der Basis-Inversion, aber im Rahmen der aus allen Sensitivitätsinversionen ermittelten Streuung. Auch die ermittelten a-posteriori Unsicherheiten lagen über denen der Basis-Inversion. Dies lässt sich einerseits auf die Verwendung von 6- statt 3-stündlichen Mittelwerten und der damit verbundenen Reduktion des Gewichts der Messungen gegenüber dem a-priori zurückführen. Andererseits erhöht sich im Kalman Filter die Unsicherheit des Emissionsfeldes von einem Zeitschritt zum nächsten in Regionen, für die keine der verwendeten Stationen sensitiv war. Dadurch findet auch im Durchschnitt ein gewisses Unsicherheitswachstum des Emissionsfeldes statt.



Abbildung 26: Absolute Differenz zwischen a-posteriori und a-priori Flüssen für Kalman Filter Inversionen mit niedrigen (links) und mit hohen Starthöhen (rechts).



Abbildung 27: Schweizer CH<sub>4</sub> Gesamtemissionen (a-priori: grün; a-posteriori: orange) für Inversionen mit verschiedenem Transportmodell und Inversionssystem.

# 5.8 Kohlenstoffmonoxid Inversion

Ein weiterer Test des Inversionssystems wurde mit Hilfe der ebenfalls in CarboCount-CH erhobenen Messungen von CO durchgeführt. Als a-priori wurde in diesem Fall das Meteotest/BAFU CO Inventar für die Schweiz und das TNO/MACC Inventar ausserhalb der Schweiz verwendet für das Referenzjahr 2008 verwendet. Daraus ergaben sich totale a-priori Emissionen von 267 Gg/yr für die Schweiz. Ausserdem wurde die Inversion direkt auf saisonale Emissionsmittelwerte angewandt, da im Falle von CO mit stärkeren Emissionsschwankungen zu rechnen war. Ansonsten wurden sämtliche Einstellungen der Basis-Inversion beibehalten.

Im Vergleich ergaben sich deutliche Reduktionen in den CO Emissionen, die grundsätzlich in den Ballungsgebieten am stärksten ausgeprägt waren. Diese Reduktionen waren am deutlichsten im Winter 2014 und Sommer 2013, während sie im Herbst 2013 relativ moderat ausfielen. Im Gegensatz dazu standen die starken Zunahmen im Frühjahr 2013 (20 % gegenüber Jahresmittel), die ebenfalls hauptsächlich die Ballungszentren betrafen. Wie bereits vorher erwähnt, zeichnete sich das Frühjahr 2013 durch eine anhaltende Phase für die Jahreszeit zu kühler Temperaturen aus. Die selbst im Vergleich zum Winter recht hohen Emissionen legen den Verdacht nahe, dass eventuell in diesem kühlen Frühling und zum Ende der Heizperiode vermehrt Holzverbrennungen zum Zuheizen verwendet wurden. Dass Basel in diesem Fall eine Ausnahme mit Reduktion bildet, ist möglicherweise ein Artefakt der Inversion, das dadurch zu erklären ist, dass Emissionen von Basel im Gegensatz zu denen anderer Zentren nur an den verwendeten Stationen ankommen, wenn Westwind-Wetterlagen vorherrschen. Diese sind aber im Gegensatz zu den Ostwetterlagen mit meist wärmeren Temperaturen und somit geringeren CO Emissionen aus dem Heizsektor verbunden. Dass sich auch für den Winter 2014 eine starke Reduktion der CO Emissionen ergibt, könnte ebenfalls damit zusammen hängen, dass dieser mit häufigen Südwestlagen sehr mild war und Heizemissionen entsprechend reduziert waren, während man im Winter generell von leicht reduzierten Verkehrsemissionen ausgehen kann. Insgesamt ergab die Inversion Schweizer CO Emissionen von 225±10 Gg/yr und 232±10 Gg/yr für niedrige und hohe Modellstarthöhen. Dies ist relativ nah an den Angaben im nationalen Inventar für 2013 (208.5 Gg/yr, FOEN, 2015b). Im Vergleich zu CH<sub>4</sub> stimmten die CO Simulationen generell besser mit den Messungen überein und es wurden a-posteriori Korrelationskoeffizienten, R<sup>2</sup>, von bis zu 0.8 erreicht. Insgesamt erhöht dieser Test mit CO Daten das Vertrauen in das Inversionssystem.



Abbildung 28: Absolute Differenzen zwischen a-posteriori und a-priori CO Emissionen. Winter (oben links), Frühling (oben rechts), Sommer (unten links), Herbst (unten links).

Weiterhin können mit den ermittelten saisonalen Emissionen für die Schweiz Immissionsverhältnisse zwischen CH<sub>4</sub> und CO gebildet werden, die mit den aus den CarboCount-CH Messungen bestimmten (siehe Abschnitt 4.2) verglichen werden können. Aus der Inversion ergaben sich Verhältnisse von 1.34, 1.29, 1.63 und 1.57 für Winter, Frühling, Sommer und Herbst. In der Tendenz entsprechen diese Werte auch dem jahreszeitlichen Verlauf, wie er für die Stationen Beromünster und Lägern-Hochwacht ermittelt wurde (Tabelle 2). Allerdings waren die saisonalen Unterschiede der durch Inversion bestimmten Immissionsverhältnisse wesentlich kleiner. Dies könnte darauf zurückgeführt werden, dass die Stationen Beromünster und Lägern-Hochwacht nicht nur von Schweizer Emissionen beeinflusst werden, sondern auch von denen aus dem nahegelegenen Ausland, für das andere Emissionsverhältnisse typisch sind. Des Weiteren zeigt diese Analyse der CO Emissionen, dass diese einen durchaus anderen Jahresgang aufweisen als die von CH<sub>4</sub>. Eine saisonale Abschätzung der CH<sub>4</sub> Emissionen aus den beobachteten Immissionsverhältnissen und den CO Emissionen, wie in Abschnitt 4.2, müsste diese Variabilität berücksichtigen.

Tabelle 4: Liste aller Sensitivitätsinversionen. Die Spalte "Stationen" bezieht sich auf die in der Inversion verwendeten
Stationsdaten. Für die Schweizer CH₄ Emissionen sind jeweils der a-priori und der a-posteriori Wert inklusive dessen 1σ
Unsicherheit gegeben. A-posteriori skill scores wurden, wenn möglich, für alle Stationen berechnet auch wenn deren
Daten nicht in die Inversionsrechnung eingingen.

		CH <sub>4</sub> Emission	nen						
	Stationen	a-priori	a-posteriori		a-po	osterio	ri skill s	core	
		(Gg/yr)	(Gg/yr)	BEO	LAE	SSL	JFJ	FRU	GIM
<b>Basis-Inversion</b>	(5.1)								
Low	BEO, LAE, JFJ, SSL	183.0±29.3	179.0±7.0	0.83	0.89	0.91	0.78	0.77	0.50
High	BEO, LAE, JFJ, SSL	183.0±29.3	195.0±7.3	0.84	0.86	0.91	0.78	0.74	0.51
Saisonalität (5.	2)								
low seas	BEO, LAE, JFJ, SSL	183.0±29.3	185.9±6.5	0.84	0.89	0.91	0.77	0.76	0.44
high seas	BEO, LAE, JFJ, SSL	183.0±29.3	197.3±6.7	0.85	0.86	0.91	0.78	0.73	0.46
Stationsauswa	hl (5.3)								
low all	BEO, LAE, JFJ, SSL, FRU, GIM	181.9±29.1	208.8±6.0	0.84	0.90	0.92	0.79	0.83	0.66
low C3	BEO, LAE, JFJ, SSL, FRU	183.3±28.3	191.2±6.2	0.84	0.90	0.91	0.78	0.82	0.46
low BEO+LAE	BEO, LAE	183.3±29.3	198.5±7.9	0.85	0.91	-	-	0.79	0.49
low BEO	BEO	184.9±29.2	183.3±10	0.85	0.83	-	-	0.78	0.40
low LAE	LAE	185.8±29.7	214.3±11	0.77	0.90	-	-	0.77	0.57
high all	BEO, LAE, JFJ, SSL, FRU, GIM	181.9±29.1	224.3±6.1	0.85	0.88	0.91	0.79	0.85	0.69
high C3	BEO, LAE, JFJ, SSL, FRU	183.3±29.2	207.7±6.5	0.85	0.88	0.91	0.79	0.85	0.48
high BEO+LAE	BEO, LAE	183.5±29.4	221.3±8.3	0.86	0.89	-	-	0.78	0.51
high BEO	BEO	184.6±29.5	200.8±11	0.87	0.81	-	-	0.78	0.38
high LAE	LAE	184.5±29.6	229.6±11	0.75	0.88	-	-	0.76	0.64
A-priori Invent	ar (5.4)								
low TNO	BEO, LAE, JFJ, SSL	188.1±30.1	180.3±7.2	0.82	0.89	0.91	0.78	0.74	0.44
low EDGAR	BEO, LAE, JFJ, SSL	228.2±36.5	184.3±7.9	0.84	0.89	0.90	0.77	0.75	0.43
low homo	BEO, LAE, JFJ, SSL	256.9±41.5	215.6±15	0.81	0.89	0.92	0.78	0.76	0.49
high TNO	BEO, LAE, JFJ, SSL	187.7±29.7	199.1±7.4	0.83	0.87	0.91	0.78	0.69	0.46
high EDGAR	BEO, LAE, JFJ, SSL	227.4±36.4	207.1±7.9	0.83	0.88	0.90	0.77	0.69	0.46
high homo	BEO, LAE, JFJ, SSL	256.9±41.7	246.0±15	0.83	0.88	0.92	0.79	0.73	0.52
Basislinienbeh	andlung (5.5)								
low bgLoc	BEO, LAE, JFJ, SSL	183.0±29.3	194.0±6.9	0.83	0.89	0.92	0.79	0.77	0.49
low bgGrid	BEO, LAE, JFJ, SSL	183.0±29.3	219.0±6.9	0.90	0.91	0.96	0.85	0.83	0.63
high bgLoc	BEO, LAE, JFJ, SSL	183.0±29.3	211.7±7.2	0.84	0.87	0.92	0.79	0.74	0.51
high bgGrid	BEO, LAE, JFJ, SSL	183.0±29.3	242.3±7.1	0.90	0.90	0.96	0.84	0.86	0.69
Kovarianzstruk	tur (5.6)								
low Stohl	BEO, LAE, JFJ, SSL	183.3±29.3	169.3±7.5	0.79	0.84	0.89	0.77	0.70	0.39
low ML	BEO, LAE, JFJ, SSL	183.0±37.3	161.3±12	0.82	0.93	0.89	0.82	0.74	0.41
high Stohl	BEO, LAE, JFJ, SSL	183.3±29.3	197.6±8.0	0.81	0.84	0.89	0.77	0.70	0.51
high ML	BEO, LAE, JFJ, SSL	183.0±65.6	157.5±10	0.85	0.91	0.89	0.77	0.61	0.37
Modell und Inv	ersionssystem (5.7)								
low ECMWF	BEO, LAE, JFJ, SSL	184.4±28.0	171.1±8.0	0.79	0.87	0.91	0.77	0.74	0.29
high ECMWF	BEO, LAE, JFJ, SSL	184.5±29.0	182.1±7.6	0.88	0.87	0.92	0.77	0.74	0.31
low Kalman	BEO, LAE, JFJ, SSL	179.6±28.7	193.2±12	0.92	0.94	0.94	0.84	-	-
high Kalman	BEO, LAE, JFJ, SSL	179.6±28.7	226.1±14	0.93	0.95	0.94	0.85	-	-

# 6 Schlussfolgerungen und Vergleich mit Schweizer Treibhausgasinventar

In Abbildung 29 sind die Ergebnisse aller Inversionsrechnungen dieser Studie in Form eines Histogramms der Schweizer CH<sub>4</sub> Gesamtemissionen für den Untersuchungszeitraum (März 2013 bis Februar 2014) zusammengestellt. Verglichen werden diese im Folgenden mit den Abschätzungen des SGHGI für das Jahr 2012, wie sie in den Jahren 2014 und 2015 ans UNFCCC rapportiert wurden (siehe auch Tabelle 5). Dabei soll auch versucht werden, anhand der ermittelten räumlichen Strukturen die ermittelten Differenzen den potentiellen Quellprozessen zuzuweisen.

Im Vergleich zu den 2014 für das Jahr 2012 rapportierten CH<sub>4</sub> Emissionen von 176±28 Gg/yr, die gut mit den hier als a-priori verwendeten Emissionen übereinstimmen, liegen die in dieser Studie ermittelten Werte etwas höher. Dies gilt sowohl für das Mittel der Basis-Inversionen (verschiedene Starthöhen, 187±10 Gg/yr) als auch für das Mittel über alle Sensitivitätsinversionen (200±20 Gg/yr). Als beste Abschätzung dieser Studie sollte der letztere Wert betrachtet werden. Dessen Unsicherheitsabschätzung basiert allein auf der Standardabweichung der Werte aller Einzelinversionen und ist deutlich grösser als die Unsicherheit aus der Basis-Inversion. Dies könnte andeuten, dass die a-priori Unsicherheit mit 16 % zu klein angegeben wurde. Dies würde auch mit den Berechnungen der Maximum-Likelihood Methode übereinstimmen, die eher eine a-priori Unsicherheit von 20 % - 35 % für die Schweizer Emissionen gefordert hatte. Selbst mit dieser Unsicherheitsabschätzung, die aus dem Ensemble aller Sensitivitätsläufe resultiert, wurde ein wichtiges Ziel des Projekts erreicht, nämlich die Reduktion der Unsicherheit im Vergleich zu den Angaben im SGHGI von dort ±16 % auf hier ±11 %.



Methane Emissions CH (Gg/yr)

Abbildung 29: Histogramm der ermittelten Schweizer CH₄ Emissionen aus allen Sensitivitätsinversionen. Die Werte der apriori (rot) und a-posteriori (grün) Emissionen der Basis-Inversion als auch der Mittelwert und dessen Unsicherheit (1σ) aus allen Inversionen (blau) sind zusätzlich mit Fehlerbalken angegeben.

Unsere beste Schätzung von 200±22 Gg/yr stimmt sehr gut mit der revidierten Version des SGHGI von 2015 für die Jahre 2012 und 2013 (den Zeitraum der hier verwendeten Messungen) überein (206±33 Gg/yr). Die Prozesse, die im revidierten Inventar am stärksten angepasst wurden sind Nutztierhaltung und Biogas- und Kompostierungsanlagen (je plus 11 Gg/yr, Tabelle 5) gefolgt von Abwasserreinigung (plus 6 Gg/yr). Die Ergebnisse der Inversion widersprechen diesem Anstieg bei der Nutztierhaltung, da im Mittel eine Emissionsreduktion in Gebieten mit hohen landwirtschaftlichen Emissionen auftrat. Allerdings scheinen diese insbesondere durch niedrigere Emissionen in den Wintermonaten bestimmt zu sein, welche eher mit den Emissionen aus der Hofdüngerbewirtschaftung (Mist/Gülle) in Verbindung gebracht werden können. Einem möglichen Anstieg bei den Nutztieremissionen würde dann eine Reduktion bei der Hofdüngerbewirtschaftung gegenüberstehen. Von Zeitz et al. (2012) wurde bereits gemutmasst, dass die Schweizerischen CH<sub>4</sub> Emissionen aus Gülle- und Mistaufbewahrung deutlich unter den von IPCC vorgeschlagenen Werten lagen. Allerdings basierten diese Ergebnisse auf Labormessungen. Eine Überprüfung im Feldversuch steht noch aus. Weiterhin wird dort argumentiert, dass Emissionen aus der Hofdüngerbewirtschaftung bei den zu erwartenden mittleren Wintertemperaturen in der Schweiz im Winter gegen 0 gehen sollten. Berücksichtigt man die Lagertemperaturen bei der Berechnung erhält man ebenfalls eine Reduktion der winterlichen Emissionen um 50 % im Vergleich zum Jahresmittel (FOEN, 2015a). Zusätzlich erscheinen erhöhte Emissionen im Frühjahr und Sommer aufgrund der erhöhten Produktivität der Milchkühe zu diesen Jahreszeiten plausibel (FOEN, 2015a). Insgesamt lässt sich also feststellen, dass der in dieser Studie ermittelte Jahresgang in den CH<sub>4</sub> Emissionen gut mit dem Prozessverständnis der landwirtschaftlichen Emissionen übereinstimmt. Diese sollten also hauptverantwortlich für den beobachteten Jahresgang sein.

Emissionen von Biogas- und Kompostanlagen sind von ehemals 5 auf 16 Gg/yr gestiegen. Im a-priori Inventar waren diese Emissionen nicht explizit räumlich zugewiesen worden. Ein Anstieg nach Region sollte also in der Inversion sichtbar sein. Allerdings liegen auch die Biogas- und Kompostanlagen recht gleich verteilt über das Schweizer Mittelland, so dass die in der Inversion beobachteten räumlichen Unterschiede in den a-posteriori Differenzen nicht abschliessend diesem Emissionsprozess zugewiesen werden konnten.

Wie bereits bei Hiller et al. (2014) angedeutet, waren die CH<sub>4</sub> Emissionen aus der Abwasseraufbereitung in der 2013er Version des SGHGI evtl. rund einen Faktor 12 zu niedrig angegeben. In der Version von 2015 werden nun Emissionen von 6.77 Gg/yr aus Abwasserreinigung angeben, was einer Erhöhung um einen Faktor 15 gegenüber den früheren Schätzungen entspricht. Die Emissionen der Abwasserreinigung folgen in ihrer räumlichen Aufteilung im Wesentlichen denen der Bevölkerungsdichte. Unsere Inversionsstudien können Emissionssteigerungen entlang der Bevölkerungsdichte nicht ausmachen. Es ist allerdings zu bemerken, dass es für die Inversion schwierig sein dürfte, diese insgesamt relativ kleine Emissionssteigerung räumlich korrekt zuzuweisen.

Prozess	SGHGI Stand 2014	SGHGI Stand 2015	Diese Studie
Total	176±28	206±33	200±22
1A Energie	4.1	3.7	
1B Verdampfungsemissionen	8.1	8.4	
2 Industrielle Prozesse	0.1	0.1	
3A Nutztierhaltung	118.9	130.5	
3B Hofdüngerbewirtschaftung	30.8	31.0	
5A Deponie	7.5	8.5	
5D Abwasserreinigung	0.4	6.8	
5C Abfallverbrennung (ohne KVA)	0.3	0.3	
5B Biogas- und Kompostierungsanlagen	5.4	16.7	

Tabelle 5: Schweizer Methan Emissionen nach wichtigsten Quellprozessen für das Jahr 2012 und aus dieser Studie für das Jahr 2013/2014. Alle Angaben in Gg/yr. Unsicherheiten geben 10 Vertrauensintervalle an.

Die grössten räumlichen Emissionssteigerungen wurden in den Inversionsrechnungen im Bereich östliches St. Gallen und Appenzell angezeigt, bei allerdings geringen Reduktionen in den Emissionsunsicherheiten. Auch dies ist eine Region mit relativ hohen a-priori Emissionen aus der Landwirtschaft. Es bleibt also fraglich, warum hier ein Anstieg vorausgesagt wurde, während in anderen landwirtschaftlichen Regionen eher eine Reduktion gefunden wurde. Eine Möglichkeit wäre ein systematischer Fehler im Transportmodell, der in den genannten Regionen konstant zu kleine Sensitivität verursacht. Im Gegenzug würde dies mit grösseren Emissionen ausgeglichen. Gegen diese These spricht, dass auch das zweite verwendete Transportmodell denselben Anstieg detektierte. Ausserdem würde der gleiche Effekt auch für andere Gase auftreten. Dies war allerdings nicht der Fall in der CO Inversion, in der kein auffälliger Anstieg in dieser Region beobachtet wurde. Als letztes könnte eine lokale Quelle nah an einer der Messstationen, die im Modell nicht korrekt beschrieben werden kann, zu systematischen Fehlern in den a-posteriori Emissionen führen. Auch dies scheint hier ausgeschlossen, da ein Emissionsanstieg im östlichen St. Gallen und Appenzell auch festgestellt wurde, wenn nur die Daten der Station Beromünster verwendet wurden. Diese liegt aber mehr als 100 km vom genannten Gebiet entfernt und nicht aufgelöste lokale Prozesse sollten eher in der Umgebung der Station zu einem Fehler führen. Es scheint sich daher um einen realen Anstieg und nicht um ein Artefakt zu handeln.

Es stellt sich dann allerdings die Frage, wie dieser Anstieg zu Stande kommt. Eine offensichtliche Möglichkeit wären falsche Angaben zu den Nutztierbeständen in den genannten Kantonen, aber dies erscheint sehr unwahrscheinlich. Auch unterschiedliche landwirtschaftliche Praktiken könnten verantwortlich sein. Allerdings liegen die a-posteriori Emissionen in der genannten Region über denen in irgendeiner anderen landwirtschaftlichen Region und es ist fraglich, wie die genannten Faktoren zu solch signifikanten Unterschieden führen sollten. Als weitere Quelle kommen evtl. industrielle und landwirtschaftliche Kompostierungs- und Vergärungsanlagen in Frage, die im bestehenden a-priori Inventar nicht räumlich aufgelöst sind. Neben den anthropogenen Quellen kämen auch natürliche Quellen in Frage, in erster Linie Emissionen aus Feuchtgebieten und Gewässern. Die in Hiller et al. (2014) angegebenen Feuchtgebietsemissionen zeigen ein Maximum eher im Entlebuch als in der genannten Region, auch wenn insbesondere im Appenzell einige Emissionen verortet werden. Weiterhin könnten Emissionen aus feuchten organischen Böden eine Rolle spielen. Insbesondere im St. Galler Rheintal (zwischen Oberriet und Widnau) findet sich ein ausgedehntes Gebiet mit organischen Böden (Wüst et al., 2015). Diese Region liegt zwar etwas östlicher als das ermittelte Emissionsmaximum, aber mit einer gewissen Unsicherheit bei der räumlichen Zuordnung kann bei dieser Entfernung zu den Messstationen gerechnet werden. Gegen hohe CH<sub>4</sub> Emissionen aus der genannten Region spricht allerdings, dass die Flächen überwiegend landwirtschaftlich genutzt werden und daher drainiert sind, mit hohen CH<sub>4</sub> Emissionen aber nur bei einem hohen Wasserspiegel zu rechnen ist. Renaturierte Feuchtgebiete und hohe Wasserspiegel nach Starkniederschlägen könnten wiederum Erklärungen für erhöhte CH<sub>4</sub> Emissionen liefern. Es kann an dieser Stelle nicht abschliessend geklärt werden, in welchem Ausmass der berechnete Anstieg im östlichen St. Gallen und Appenzell realistisch ist und welche Quelle ihn verursacht haben könnte. CH<sub>4</sub> Messungen für weitere Jahre und anschliessende neue Inversionsrechnungen werden notwendig sein, um dies Ergebnis zu bestätigen oder zu verwerfen.

Zusammenfassend kann man festhalten, dass die atmosphärischen Messungen von  $CH_4$  und die verwendete inverse Emissionsmodellierung die revidierten Angaben des Schweizer Treibhausgasinventars für das Landestotal sehr gut bestätigen. Die Inversionsrechnungen erlauben eine weitere Einschränkung des Unsicherheitsbereichs. In Bezug auf die räumliche Verteilung und die Aufteilung in verschiedene Quellprozesse lieferte die Inversion einige plausible Anhaltspunkte, während andere Ergebnisse erst noch durch weitere Studien erhärtet werden müssen.

# 7 Ausblick

Die hier präsentierte Studie stellt die erste ihrer Art für die Schweiz dar. Vorhergehende Inversionsanalysen von Methan und anderen Treibhausgasen zielten meist auf grössere Regionen oder Kontinente ab (z.B. Bergamaschi et al. (2015) und dort enthaltende Referenzen). Erst wenige Inversionsstudien auf der hier verwendeten Skala sind bislang publiziert worden (McKain et al., 2015;Santoni, 2013). Als solches war in dieser Studie mit besonderen Herausforderungen zu rechnen, zum einen wegen des relativ kleinen Modellgebiets und der hohen räumlichen Auflösung, die notwendig war, um dieses Gebiet zu beschreiben. Zum anderen wurden atmosphärische Messungen von neu eingerichteten Standorten verwendet, die erst noch ihre Nutzbarkeit für die gesetzte Fragestellung demonstrieren mussten.

Das hier verwendete Transportmodell FLEXPART-COSMO basiert auf Eingabedaten der MeteoSchweiz. Zu Projektstart war vorgesehen nicht die 7 km x 7 km Auflösung des COSMO Modells zu verwenden, sondern die 2 km x 2 km Version. Dadurch wäre eine deutlich bessere Beschreibung der komplexen Topographie erreicht worden. Leider wurde aber festgestellt, dass die als Momentanwerte gespeicherten Windfelder der 2 km Version zu fehlerhaften Simulationen mit FLEXPART-COSMO führten. Dies dürfte hauptsächlich an der zeitlich sehr variablen Konvektion liegen, die in dieser Modellversion explizit aufgelöst wird, während sie in der 7 km Version parametrisiert ist. Um dieses Problem zu beheben, wird zurzeit an einer COSMO Version gearbeitet, die mittlere statt momentane Felder speichert. Dies sollte in Zukunft noch bessere Transportsimulationen erlauben und den a-posteriori Fehler der Emissionsfelder weiter verringern.

Von den Schweizer Stationen wurden die Messungen des Turms in Beromünster am besten vom Modell wiedergegeben. Dies unterstreicht nochmals den Vorteil der Verwendung von Messungen an hohen Türmen, die weniger stark von lokalen Effekten beeinflusst werden. Es ist in diesem Zusammenhang auch interessant, dass sich die Inversionsergebnisse einer nur Beromünster verwendenden Inversion nicht besonders stark von der Basis-Inversion unterschieden. Dies war nicht der Fall, wenn nur Lägern-Hochwacht verwendet wurde. Dies eröffnet die Möglichkeit, in Zukunft weitere Messungen von Treibhausgasen (z.B. auch F-Gase) in Beromünster durchzuführen, um die Abschätzung der Schweizer Emissionen zu verbessern. Im Projekt TRACE-N2O (SNF/DMG) werden ab Sommer 2015 Messungen von Lachgas und seinen Isotopen am Beromünster Turm starten, um dessen Bildungsprozesse in Böden besser zu verstehen und in biogeochemischen Modellen zu beschreiben.

Wie mehrfach erläutert, scheint die Station Gimmiz stark von lokalen CH<sub>4</sub> Quellen dominiert zu werden, deren Einfluss vom hier verwendeten Modellsystem nicht korrekt wiedergegeben werden kann. Es scheint daher sinnvoll, weitere Treibhausgasmessungen an einem anderen Standort in der Westschweiz anzustreben. Am besten geeignet wäre sicherlich ein weiterer Standort, der über einen hohen Turm (>100 m) verfügt. Alternativ könnte aber auch ein erhöhter Standort mit kleinem Turm, ähnlich wie Lägern-Hochwacht, ausreichen. Die Inversionsergebnisse in der Westschweiz liessen sich durch eine derartige zusätzliche Messung wahrscheinlich deutlich verbessern. Als letztes sei nochmals erwähnt, dass der hier verwendete Zeitraum (März 2013 bis Februar 2014) ausgeprägte klimatologische Anomalien aufwies. Der März und April 2013 waren untypisch kalt und häufig durch Wetterlagen mit östlicher Advektion dominiert, während der Januar und Februar 2014 untypisch mild waren und Süd-West-Advektion vorherrschte. Diese Anomalien können einerseits Einfluss auf die Emissionen gehabt haben (Temperaturabhängigkeit der CH<sub>4</sub> Bildungsprozesse) aber auch zu systematischen Abweichungen in den Transportsimulationen geführt haben. Es ist daher empfehlenswert, die Analyse auf weitere Jahre (CarboCount-CH Messungen für 2014 stehen mittlerweile vollständig zur Verfügung) auszudehnen, um die hier gewonnenen Erkenntnisse zu erhärten.

# Danksagungen

Ein besonderer Dank gilt den Partnern im SNF-Sinergia Projekt CarboCount-CH für den Betrieb der Messstationen, insbesondere Brian Oney (Empa) für die Station Lägern, Markus Leuenberger und Rüdiger Schanda (Universität Bern) für die Stationen Beromünster und Gimmiz und Werner Eugster, Ines Bamberger und Nina Buchmann (ETH Zürich) für die Station Früebüel. Wir danken ferner der Stiftung Hochalpiner Forschungsstationen Jungfraujoch und Gornergrat (HFSJG) für den Zugang zu den Einrichtungen auf dem Jungfraujoch. Auch das Deutsche Umweltbundesamt (UBA) und Frank Meinhardt seien an dieser Stelle für die Bereitstellung der CH<sub>4</sub> Messreihe der Station Schauinsland dankend erwähnt. Daniel Bretscher und Chloé Wüst möchten wir für ihre Anregungen und Diskussionen zu den vorgelegten Ergebnissen danken.

# Referenzen

- Bamberger, I., Oney, B., Brunner, D., Henne, S., Leuenberger, M., Buchmann, N., and Eugster, W.: Observation of atmospheric methane and carbon dioxide: Tall tower or mountain top stations?, in preparation, 2015.
- Bergamaschi, P., Corazza, M., Karstens, U., Athanassiadou, M., Thompson, R. L., Pison, I., Manning, A. J., Bousquet, P., Segers, A., Vermeulen, A. T., Janssens-Maenhout, G., Schmidt, M., Ramonet, M., Meinhardt, F., Aalto, T., Haszpra, L., Moncrieff, J., Popa, M. E., Lowry, D., Steinbacher, M., Jordan, A., O'Doherty, S., Piacentino, S., and Dlugokencky, E.: Top-down estimates of European CH4 and N2O emissions based on four different inverse models, Atmos. Chem. Phys., 15, 715-736, doi: 10.5194/acp-15-715-2015, 2015.
- Brunner, D., Henne, S., Keller, C. A., Reimann, S., Vollmer, M. K., O'Doherty, S., and Maione, M.: An extended Kalman-filter for regional scale inverse emission estimation, Atmos. Chem. Phys., 12, 3455-3478, doi: 10.5194/acp-12-3455-2012, 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.
- Felber, R., Münger, A., Neftel, A., and Ammann, C.: Eddy covariance methane flux measurements over a grazed pasture: effect of cows as moving point sources, Biogeosciences Discuss., 12, 3419-3468, doi: 10.5194/bgd-12-3419-2015, 2015.
- FOEN: Switzerland's greenhouse gas inventory 1990-2011, Submission of April 2013 under the United Nations Framework Convention on Climate Change and under the Kyoto Protocol, Federal Office for the Environment (FOEN), Bern, 2013.
- FOEN: Switzerland's greenhouse gas inventory 1990–2012, Submission of April 2014 under the United Nations Framework Convention on Climate Change and under the Kyoto Protocol, Federal Office for the Environment (FOEN), Bern, 2014.
- FOEN: Switzerland's greenhouse gas inventory 1990-2013, Submission of April 2015 under the United Nations Framework Convention on Climate Change and under the Kyoto Protocol, Federal Office for the Environment (FOEN), Bern, 2015a.
- FOEN: Switzerland's Informative Inventory Report 2015 (IIR), Federal Office for the Environment (FOEN), Bern, 2015b.
- Gao, Z., Yuan, H., Ma, W., Li, J., Liu, X., and Desjardins, R. L.: Diurnal and Seasonal Patterns of Methane Emissions from a Dairy Operation in North China Plain, Advances in Meteorology, 2011, 7, doi: 10.1155/2011/190234, 2011.
- 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.

- Kalnay, E.: Atmospheric Modeling, Data Assimilation and Predictability, Cambridge : Cambridge University Press, 2002.
- Krystek, M., and Anton, M.: A weighted total least-squares algorithm for fitting a straight line, Meas. Sci. Technol., 18, 3438-3442, 2007.
- Kuenen, 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.
- McKain, K., Down, A., Raciti, S. M., Budney, J., Hutyra, L. R., Floerchinger, C., Herndon, S. C., Nehrkorn, T., Zahniser, M. S., Jackson, R. B., Phillips, N., and Wofsy, S. C.: Methane emissions from natural gas infrastructure and use in the urban region of Boston, Massachusetts, Proceedings of the National Academy of Sciences, 112, 1941-1946, doi: 10.1073/pnas.1416261112, 2015.
- Michalak, A. M., Hirsch, A., Bruhwiler, L., Gurney, K. R., Peters, W., and Tans, P. P.: Maximum likelihood estimation of covariance parameters for Bayesian atmospheric trace gas surface flux inversions, J. Geophys. Res., 110, D24107, doi: 10.1029/2005JD005970, 2005.
- 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. Discuss., submitted, 2015.
- Reimann, S., Vollmer, M., Brunner, D., Steinbacher, M., Hill, M., and Emmenegger, L.: Kontinuierliche Messung von Nicht-CO<sub>2</sub>-Treibhausgasen auf dem Jungfraujoch (HALCLIM-5), Empa/BAFU, Dübendorf/Bern, Switzerland, 75, 2014.
- 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.
- Santoni, G. W.: Fluxes of Atmospheric Methane Using Novel Instruments, Field Measurements, and Inverse Modeling, PhD thesis, Department of Earth and Planetary Sciences, Harvard University, Cambridge, Ma, 2013.
- 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.
- Stohl, A., Seibert, P., Arduini, J., Eckhardt, S., Fraser, P., Greally, B. R., Lunder, C., Maione, M., Mühle, J., O'Doherty, S., Prinn, R. G., Reimann, S., Saito, T., Schmidbauer, N., Simmonds, P. G., Vollmer, M. K., Weiss, R. F., and Yokouchi, Y.: An analytical inversion method for determining regional and global emissions of greenhouse gases: Sensitivity studies and application to halocarbons, Atmos. Chem. Phys., 9, 1597-1620, doi: 10.5194/acp-9-1597-2009, 2009.
- Taylor, K. E.: Summarizing multiple aspects of model performance in a single diagram., J. Geophys. Res., 106, 7183-7192, 2001.
- Thompson, R. L., Gerbig, C., and Rodenbeck, C.: A Bayesian inversion estimate of N2O emissions for western and central Europe and the assessment of aggregation errors, Atmos. Chem. Phys., 11, 3443-3458, doi: 10.5194/acp-11-3443-2011, 2011.
- Wüst, C., Leifeld, J., and Grünig, A.: Locating Organic Soils for the Swiss Greenhouse Gas Inventory, in preparation, 2015.
- Zambrano-Bigiarini, M., and Rojas, R.: A model-independent Particle Swarm Optimisation software for model calibration, Environmental Modelling & Software, 43, 5-25, doi: 10.1016/j.envsoft.2013.01.004, 2013.
- Zeeman, M. J., Hiller, R., Gilgen, A. K., Michna, P., Plüss, P., Buchmann, N., and Eugster, W.: Management and climate impacts on net CO2 fluxes and carbon budgets of three grasslands along an elevational gradient in Switzerland, Agricultural and Forest Meteorology, 150, 519-530, doi: 10.1016/j.agrformet.2010.01.011, 2010.
- Zeitz, J. O., Soliva, C. R., and Kreuzer, M.: Swiss diet types for cattle: how accurately are they reflected by the Intergovernmental Panel on Climate Change default values?, Journal of Integrative Environmental Sciences, 9, 199-216, doi: 10.1080/1943815X.2012.709253, 2012.
- 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	Cavity Ring Down Spektrometer
COSMO	<b>CO</b> nsortium for <b>S</b> mall scale <b>MO</b> delling: Das Wettervorhersagemodell der Meteo Schweiz
COSMO7	Die operationelle Modellanalyse der Meteo Schweiz mit einer horizontalen Auflösung von 7 km x 7 km
ECMWF	European Centre for Medium-Range Weather Forecasts
EDGAR	Globales Emissionsinventar des JRC
EMEP	European Monitoring and Evaluation Programme
FLEXPART	Lagrang'sches Partikelausbreitungsmodell, betrieben mit ECMWF Modelldaten
FLEXPART-COSMO	Lagrang'sches Partikelausbreitungsmodell, betrieben mit COSMO Modelldaten
GAW	Global Atmosphere Watch
GC-MS	Gaschromatographie – Massenspektrometrie zur Messung von Spurengasen.
IPCC	International Panel for Climate Change
LPDM	Langrangian Particle Dispersion Model. 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
NOAA	National Oceanic and Atmospheric Administration.
NWP	Numerische Wettervorhersage
ppb	<b>p</b> arts <b>p</b> er <b>b</b> illion. Anzahl Moleküle in 10 <sup>9</sup> 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 Mischungsver-
	hältnis (mixing ratio) verwendet.
ppm	<b>p</b> arts <b>p</b> er <b>m</b> illion. Sinngemäss zu ppb, aber 3 Grössenordnungen grösser (Anteil in 10 <sup>-6</sup> ).
RMSE	Wurzel des mittleren guadratischen Fehlers (Root Mean Square Error)
SGHGI	Swiss Greenhouse Gas Inventory
STHGI	Schweizer Treibhausgas Inventar
TNO/MACC	Europäisches Emissionsinventar erstellt von TNO (Niederlande) für das EU Projekt MACC
UNFCCC	United Nations Framework Convention on Climate Change
WMO	World Meteorological Organization