

# 地球表層における物質循環モデルの開発研究

課題責任者  
関谷 高志

海洋研究開発機構 地球環境部門 地球表層システム研究センター

## 著者

Naveen Chandra \*1, Prabir K. Patra\*1,2

\*1 海洋研究開発機構 地球環境部門 地球表層システム研究センター, \*2 総合地球環境学研究所

**キーワード：**メタン, 同位体モデリング, メタン漏洩排出, CO<sub>2</sub>逆モデリング, 化石燃料燃焼CO<sub>2</sub>排出

## 1. イントロダクション

二酸化炭素(CO<sub>2</sub>)およびメタン(CH<sub>4</sub>)は最も重要な二つの温室効果気体(GHGs)であり、気候変動に重要な役割を果たしている[1]。パリ協定で定められた気候目標の達成には、全球～領域規模のGHGsの発生源と消失源、それらの変動要因を包括的に理解する必要がある。このような観点から、本研究では、先進的な逆モデリング技術と安定同位体( $\delta^{13}\text{C}-\text{CH}_4$ )のわずかな変動のシミュレーションをそれぞれ用いて、CO<sub>2</sub>とCH<sub>4</sub>の全球～領域規模収支を推定した。大気CO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>及び $\delta^{13}\text{C}-\text{CH}_4$ を含むシミュレーションはJAMSTECの地球シミュレータ上で開発されたMIROC4を基礎とした大気化学輸送モデル(MIROC4-Actm)を用いて行なった[2-5]。

## 2. 結果と議論

CH<sub>4</sub>同位体シミュレーションとCO<sub>2</sub>逆モデリングは、大気中のCH<sub>4</sub>変動を支配する主要なプロセスを明らかにし、大気と陸域/海洋貯留層間の正味CO<sub>2</sub>交換フラックスの推定値を改善した。その結果を以下に要約する。

### 2.1. 安定同位体モデリングを用いた大気メタンのフットプリント追跡

全球CH<sub>4</sub>収支の現在の理解は主に大気観測を用いてCH<sub>4</sub>総放出量の時空間分布を推定する逆推定研究に頼っている[2]。しかしながら、これらの手法における、個々の発生起源が大気CH<sub>4</sub>の時間変動に対してどのように寄与したかを特定する能力は限定的であり、過去数十年來のキーとなる研究対象である。CH<sub>4</sub>の同位体組成は、発生

起源によって安定同位体比( $\delta^{13}\text{C}-\text{CH}_4$ )が明確に異なるため、大気CH<sub>4</sub>の起源に関する貴重な知見を提供する[6]。全球平均した発生源における $\delta^{13}\text{C}-\text{CH}_4$ の値は-54‰から-52‰の範囲にあるが、化学的消失の影響を加味すると大気CH<sub>4</sub>の安定同位体組成はおよそ-47‰に収束する。湿地や埋立地、畜産のような微生物起源の発生源は同位体的に“軽い”CH<sub>4</sub>( $\delta^{13}\text{C}-\text{CH}_4$ が-47‰より低い値)を放出する一方で、石油、天然ガス、石炭からの漏洩排出を含む化石燃料起源の発生源は同位体的に“重い” $\delta^{13}\text{C}-\text{CH}_4$ で特徴付けられる(図1)。

本研究では、1970～2020年の大気CH<sub>4</sub>と $\delta^{13}\text{C}-\text{CH}_4$ の過去の変化をシミュレートするためにMIROC4-Actmに同位体モジュールを構築した[4]。我々の解析では、大気CH<sub>4</sub>及び $\delta^{13}\text{C}-\text{CH}_4$ の観測された変化傾向と様々な排出インベントリに基づく推定に不一致が存在することが強調された。例えば、微生物・化石燃料起源の排出量の両方が増加すると推計したEDGARv6インベントリを用いた場合、観測されたトレンドを再現することができなかった。それに対して、化石燃料起源の排出量が1990～2004年にかけて減少し、その後顕著な変化がないと推計したGAINSv4インベントリ(米国でのシェールガス採掘に伴う大きな放出量の増加を除いた場合)を用いた場合は、大気CH<sub>4</sub>と $\delta^{13}\text{C}-\text{CH}_4$ の観測されたトレンドと緯度・鉛直分布を捉えることに成功した(図2)。

より詳細な調査により、化石燃料部門の細かな変化を明らかにした。2000～2010年の石油および天然ガス(ONG)部門からの排出量が減少と、2000～2012年の石炭関連の排出量の増加とその後の減少が寄与して、化石燃料の漏洩排出量はこの期間において安定した傾向を示している(図2)。

対照的に、微生物由来の排出量は1990～2020年の間に約27 Tg CH<sub>4</sub> yr<sup>-1</sup>増加したが、これは主にラテンアメリカにおける牧畜の拡大と、中国、インド、東南アジア、ラテンアメリカ、アフリカなどの急速に発展している地域における廃棄物関連の排出量の増加が主要因である(図2)。

結論として、本研究で得られた知見は、農業活動と埋立地からの微生物由来の排出量増加が過去30年間の大気CH<sub>4</sub>トレンドの主要因であったことを強調するものである。これらの結果は本年度 Communications Earth & Environment誌に掲載されたものである[4]。



図1. CH<sub>4</sub>同位体モデリングの概念図。安定炭素同位体比( $\delta^{13}\text{C}$ )は基準値と比べた分子の炭素同位体量の相対的な違いを表している。それぞれのCH<sub>4</sub>発生源は異なる $\delta^{13}\text{C}$ 値で特徴づけられており、CH<sub>4</sub>総排出量とそれに対する発生起源別の寄与の推定を可能としている。

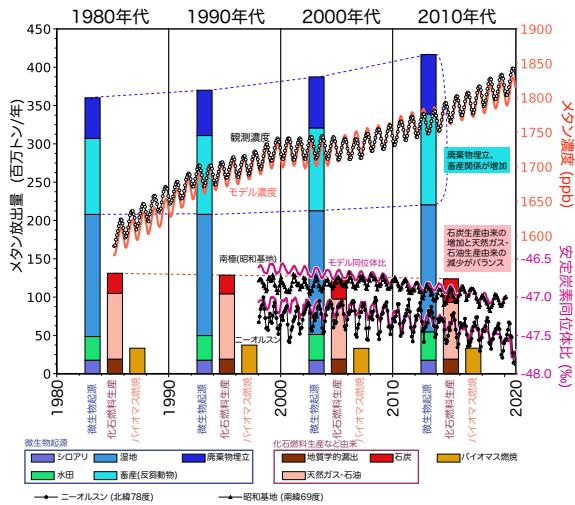


図2. 全球  $\text{CH}_4$  と  $\delta^{13}\text{C}-\text{CH}_4$  トレンドの発生起源特定。排出量を微生物、化石燃料、バイオマス燃焼の3つのサブカテゴリーに分けた。南半球を代表する月平均の  $\text{CH}_4$  濃度の観測値を白丸で、モデル計算値を実線で示している。 $\delta^{13}\text{C}-\text{CH}_4$ についても東北大大学と国立極地研究所による南北両極（南極昭和基地とスバルラバール諸島ニーオルスン）における観測データ（▲および●）とモデル結果（紫線）を示している。

## 2.2. 化石燃料由来の $\text{CO}_2$ 排出量の不確実性がフラックス逆推定に与える影響

全球炭素放出・吸収バランスのトレンドや変動の現実的な推定は、パリ協定で定められた地球温暖化を  $1.5^{\circ}\text{C}$  もしくは  $2^{\circ}\text{C}$  に止める目標に対する残余カーボンバジエットの決定に重要である [1,7,8]。大気輸送モデルを用いて大気  $\text{CO}_2$  観測を統合したフラックス逆推定は、陸域・海洋と大気間のフラックスを推定するための強力なツールである [3,9,10]。通常の  $\text{CO}_2$  フラックス逆解析では、化石燃料由来の  $\text{CO}_2$  (Fossil  $\text{CO}_2$ ;  $\text{FCO}_2$ ) 排出量は精度が良いと仮定し、観測とモデルの不一致は専ら自然起源フラックスの不確実性に起因するとしている。しかしながら、この仮定は、特に中国のような主要な排出領域における  $\text{FCO}_2$  排出量に内在する不確実性を無視している。中国では、エネルギー統計の不整合により報告される排出量が 14–18% 変動し得る [8,11,12]。このような見落としは逆解析で得られたフラックス推定にバイアスをもたらす。

先行研究では  $\text{FCO}_2$  排出量の不確実性をある程度考慮しているが [9,13]、時空間的な不確実性の変動を陽に考慮した解析は限られている。これらのギャップは特に急速に  $\text{FCO}_2$  が増加する 2000 年代と増加率が鈍化する 2010 年代において重要である（図3a）。この制限は、従来の  $\text{FCO}_2$  排出インベントリに正式な不確実性の見積もりがないことが主な原因である。最近の Gridded Fossil Emissions Dataset (GridFED) は、このギャップに対応し、石炭、石油、ガス、セメントといった主要セクターにわたる空間的に変動する不確実性の推定値を提供しており [14]、 $\text{FCO}_2$  の不確実性がフラックス推定に与える影響のより包括的な評

価を可能にしている。

GridFEDv2023.1 を用いて、2 つの  $\text{FCO}_2$  排出シナリオを構築した：(1) Friedlingstein et al. [8] に整合的な全ての排出部門を集約した中央推定値および (2) オリジナルの解像度における排出部門ごとの不確実性による修正を組み込んだ下限シナリオ ( $\text{glFCO}_2 = \sum_i (\text{gmFCO}_{2i} - \text{Unc}_i)$ ;  $i = \text{石炭}, \text{石油}, \text{ガス}, \text{セメント}$ ) である（図4）。これらの  $\text{FCO}_2$  排出量先駆情報の 2 つケースを用いて、50 サイトからの観測値と MIROC4-Actm ベースの逆解析システムを用いて、それぞれ 2 つの  $\text{CO}_2$  フラックス逆解析 ( $\text{Post\_gmFCO}_2$  と  $\text{Post\_glFCO}_2$ ) を行なった。

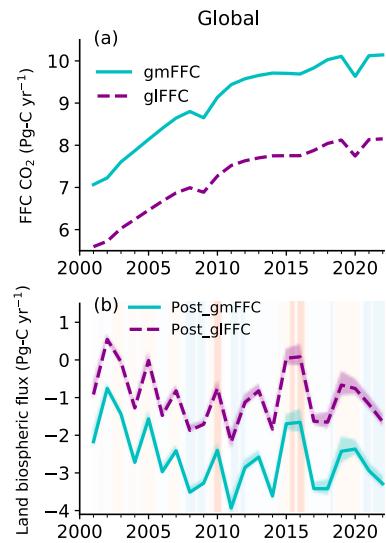


図3. 陸域生物圏  $\text{CO}_2$  フラックス逆推定における化石燃料由来の全球  $\text{CO}_2$  ( $\text{FCO}_2$ ) 排出量が与える影響。(a) 2 つの排出シナリオ下における全球  $\text{FCO}_2$  排出量の時間変化。(b) 対応する陸域生態系  $\text{CO}_2$  フラックス逆推定に対する影響。ここでは負の値は正味の炭素吸収、正の値は正味の炭素放出を意味する。背景の塗潰しは Multivariate ENSO 指数 (MEI) であり、橙色はエルニーニョ、青色はラニーニャであることを示す。

観測された地表  $\text{CO}_2$  濃度と整合させるため、逆解析は、 $\text{FCO}_2$  中央推定値を用いたケース ( $\text{gmFCO}_2$ ) では、下限シナリオ ( $\text{glFCO}_2$ ) よりも大きな陸域生物圏  $\text{CO}_2$  吸収を推定した（図3a, b）。全球規模では、 $\text{FCO}_2$  排出量（2001～2022 年）の潜在的な不確実性により、逆解析で得られた陸域生物圏フラックスに  $1.65 \text{ Pg C yr}^{-1}$  の差が生じたが、海洋  $\text{CO}_2$  フラックスはほとんど影響を受けなかった。これらのバイアスは、 $\text{FCO}_2$  排出量が陸域に集中し、陸域生物圏による  $\text{CO}_2$  吸収量の推定に代償誤差を引き起こしているために生じている。

$\text{FCO}_2$  排出量の不確実性は、中国をはじめとする発展途上国からの排出量の割合が増加したことにより、時間の経過とともに増加してきた（図4a）。2001～2011 年にかけて、 $\text{FCO}_2$  排出量の不確実性は、中国の排出量増加に牽引されて急速に増加した（ $\sim 0.5 \text{ Pg C}$ ）。 $\text{FCO}_2$  排出量の不確実性のトレンドは、世界経済成長の鈍化（2000 年代の年

率4%から2010年代の年率3%へ)と、インドや中国のような新興国におけるグリーン・エネルギー技術の導入 [8]により、2011年以降は安定した。2001～2011年と2011～2022年の間のFCO<sub>2</sub>成長率の明確な差異(図4a)は、逆推定による陸域生物圏フラックスのトレンドの大きな違いにつながった。2001年から2011年にかけて、FCO<sub>2</sub>排出量の不確実性が急速に増加したため、FCO<sub>2</sub>中央推定値ケースでは、下限シナリオと比較して、全球の陸域生物圏吸収量の推定値がより速く増加した(図4b)。2012年以降、2つのケースの間のFCO<sub>2</sub>の差異は安定化し、陸域生物圏フラックス推定値の系統的なバイアスは、-1.73 Pg C yr<sup>-1</sup>と一定となり、2001年から2011年の間のバイアスの急激な増加とは対照的であった(図4b)。このことは、FCO<sub>2</sub>排出量の不確実性が逆解析による陸域生物圏フラックスの成長率と大きさの両方に重大な影響を与えることを強調している。DGVMやESMの評価[15-17]にフラックス逆解析が広く利用されていることを考えると、これらのFCO<sub>2</sub>排出バイアスを補正することは、炭素循環研究を進める上で不可欠である。

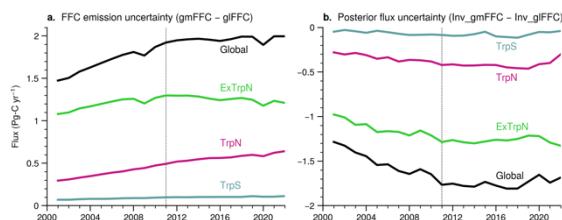


図4. 全球および緯度帯別のFCO<sub>2</sub>排出量の違いが陸域生物圏フラックス推定に与える影響。(a) 全球および緯度帯別のFCO<sub>2</sub>排出量の差異(gmFCO<sub>2</sub>-glFCO<sub>2</sub>)。(b)逆解析を通じて推定された陸域生物圏CO<sub>2</sub>フラックスの不確実性。2001年から2011年にかけては、FCO<sub>2</sub>のバイアスが増加することで、中央値と下限値のフラックス推定値の乖離が増幅される顕著な双極子関係がみられた。

逆解析の中央推定値ケース(Post\_gmFCO<sub>2</sub>)は、Global Carbon Project(GCP)[8,18-20]での全球・領域規模の炭素収支の評価、緯度帯別の炭素収支の理解の向上[15,16,21]、南アジアの特定地点で観測されたCO<sub>2</sub>変動[22,23]の解釈など、複数の国際的研究活動にも貢献している。

## 謝辞

本研究は、環境研究総合推進費（助成番号：JPMEERF24S12205）（環境省）および北極域研究加速プロジェクト(ArCS-II)（助成番号：JPMXD1420318865）（文部科学省）の助成を受けた。

## 文献

- [1] Canadell, J. G. et al., “Global carbon and other biogeochemical cycles and feedbacks”, In Climate Change 2021: The Physical Science Basis. Contribution of WG I to the AR6 of the IPCC (2021).
- [2] Chandra, N. et al., “Emissions from the Oil and Gas Sectors, Coal Mining and Ruminant Farming Drive Methane Growth over the Past Three Decades”, *J. Meteor. Soc. Jpn.*, 99(2) (2021).
- [3] Chandra, N. et al., “Estimated regional CO<sub>2</sub> flux and uncertainty based on an ensemble of atmospheric CO<sub>2</sub> inversions”, *Atmos. Chem. Phys.*, 22, 9215–9243 (2022).
- [4] Chandra, N. et al., “Methane emissions decreased in fossil fuel exploitation and sustainably increased in microbial source sectors during 1990–2020”, *Commun. Earth Environ.*, 5, 1–15 (2024).
- [5] Patra, P. K. et al., “Improved Chemical Tracer Simulation by MIROC4.0-based Atmospheric Chemistry-Transport Model (MIROC4-CTM)”, *SOLA*, 14, 91–96 (2018).
- [6] Sherwood, O. A., Schwietzke, S., Arling, V. A. & Etiopic, G., “Global Inventory of Gas Geochemistry Data from Fossil Fuel, Microbial and Burning Sources, version 2017”, *Earth Syst. Sci. Data*, 9, 639–656 (2017).
- [7] Bustamante, M. et al., “Ten New Insights in Climate Science 2023/2024”, *Global Sustainability*, 1–58, doi:10.1017/sus.2023.25 (2023).
- [8] Friedlingstein, P. et al., “Global Carbon Budget 2023”, *Earth Syst. Sci. Data*, 15, 5301–5369 (2023).
- [9] Saeki, T. & Patra, P. K., “Implications of overestimated anthropogenic CO<sub>2</sub> emissions on East Asian and global land CO<sub>2</sub> flux inversion”, *Geosci. Lett.* 4(9) (2017).
- [10] Gurney, K. R. et al., “Towards robust regional estimates of CO<sub>2</sub> sources and sinks using atmospheric transport models”, *Nature*, 415, 626–630 (2002).
- [11] Guan, D., Liu, Z., Geng, Y., Lindner, S. & Hubacek, K., “The gigatonne gap in China’s carbon dioxide inventories”, *Nature Clim. Change*, 2, 672–675 (2012).
- [12] Han, P. et al., “Evaluating China’s fossil-fuel CO<sub>2</sub> emissions from a comprehensive dataset of nine inventories”, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 11371–11385 (2020).
- [13] Oda, T., Feng, L., Palmer, P. I., Baker, D. F. & Ott, L. E., “Assumptions about prior fossil fuel inventories impact our ability to estimate posterior net CO<sub>2</sub> fluxes that are needed for verifying national inventories”, *Environ. Res. Lett.* 18, 124030 (2023).
- [14] Jones, M.W. et al., “Gridded fossil CO<sub>2</sub> emissions and related O<sub>2</sub> combustion consistent with national inventories 1959–2018”, *Sci Data* 8, 2 (2021).
- [15] Liu, Z. et al., “Respiratory loss during late-growing season determines the net carbon dioxide sink in northern permafrost regions”, *Nat. Commun.*, 13, 5626 (2022).
- [16] O’Sullivan, M. et al., “The key role of forest disturbance in reconciling estimates of the northern carbon sink”, *Commun. Earth Environ.*, 5, 1–10 (2024).
- [17] Patra, P. K. et al., “Evaluation of earth system model and atmospheric inversion using total column CO<sub>2</sub> observations from GOSAT and OCO-2”, *Prog. Earth Planet. Sci.*, 8, 25 (2021).
- [18] Friedlingstein, P. et al., “Global Carbon Budget 2024”,

*Earth Syst. Sci. Data Discuss.*, 1–133, doi:10.5194/essd-2024-519 (2024).

[19] Wang, X. et al., “The Greenhouse Gas Budget of Terrestrial Ecosystems in East Asia Since 2000”, *Global Biogeochem. Cy.*, 38, e2023GB007865 (2024).

[20] Hugelius, G. et al., “Permafrost Region Greenhouse Gas Budgets Suggest a Weak CO<sub>2</sub> Sink and CH<sub>4</sub> and N<sub>2</sub>O Sources, But Magnitudes Differ Between Top-Down and Bottom-Up Methods”, *Global Biogeochem. Cy.*, 38, e2023GB007969 (2024).

[21] Das, C. et al., “Meridional Propagation of Carbon Dioxide (CO<sub>2</sub>) Growth Rate and Flux Anomalies From the Tropics Due to ENSO”, *Geophys. Res. Lett.*, 49, e2022GL100105 (2022).

[22] Uma, K. N. et al., “CO<sub>2</sub> variability over a tropical coastal station in India: Synergy of observation and model”, *Sci. Total Environ.*, 957, 177371 (2024).

[23] Pathakoti, M. et al., “Neighbouring effect of land use changes and fire emissions on atmospheric CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> over suburban region of India (Shadnagar)”, *Sci. Total Environ.*, 921, 171226 (2024).

## Environmental Geochemical Cycle Modelling Research

### Project Representative

Takashi Sekiya      Earth Surface System Research Center, Research Institute for Global Change, Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology

### Authors

Naveen Chandra<sup>\*1</sup>, Prabir K. Patra<sup>\*1,2</sup>

<sup>\*1</sup> Research Institute for Global Change (RIGC), JAMSTEC, Kanazawa, Yokohama, Japan

<sup>\*2</sup> Research Institute for Humanity and Nature, Kyoto, 6038047, Japan

**Keywords :** CH<sub>4</sub> isotope modelling, Fugitive CH<sub>4</sub> emissions, CO<sub>2</sub> inverse modelling, Fossil fuel CO<sub>2</sub> emissions.

### 1. Introduction

Carbon dioxide (CO<sub>2</sub>) and methane (CH<sub>4</sub>) are the two most important greenhouse gases (GHGs), significantly driving anthropogenic climate change[1]. Achieving the climate goals outlined in the Paris Agreement requires a robust quantification of global and regional GHG sources, sinks, as well as a clear understanding of the factors controlling their atmospheric variability. In view of this, we estimate the global and regional CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> budgets using advanced inverse modeling techniques for CO<sub>2</sub> and simulations of subtle variations in the stable carbon isotope ratios of CH<sub>4</sub> ( $\delta^{13}\text{C-CH}_4$ ). These simulations (CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, and  $\delta^{13}\text{C-CH}_4$ ) were performed using JAMSTEC's MIROC4-based atmospheric chemistry-transport model (MIROC4-Actm) on the Earth Simulator (ESS) [2–5].

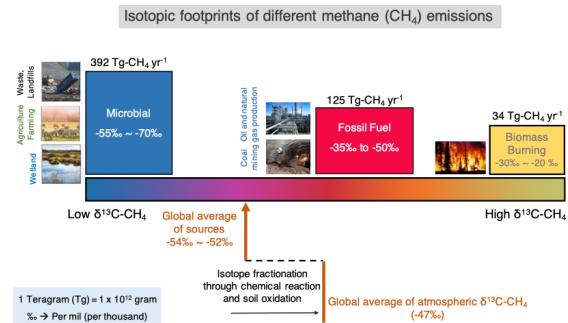
### 2. Results and Discussions

The CH<sub>4</sub> isotope simulations and CO<sub>2</sub> inverse modelling reveal key processes governing atmospheric CH<sub>4</sub> variability as well as the improved estimates of net CO<sub>2</sub> exchange fluxes between the atmosphere and terrestrial/oceanic reservoirs. The findings are summarized below.

#### 2.1. Tracing Footprints of Atmospheric CH<sub>4</sub> Using Stable Isotope ( $\delta^{13}\text{C-CH}_4$ ) Modeling.

The current understanding of the global CH<sub>4</sub> budget primarily relies on inversion studies that estimate the spatiotemporal distributions of total CH<sub>4</sub> fluxes using atmospheric observations<sup>2</sup>. However, these methods have limited capability to disentangle individual CH<sub>4</sub> source contributions to temporal variations in atmospheric CH<sub>4</sub>. This challenge remains a key research focus of the past several decades. The isotopic composition of CH<sub>4</sub> provides valuable insights into its atmospheric origins, as different sources emit CH<sub>4</sub> with distinct stable carbon isotopic ratios

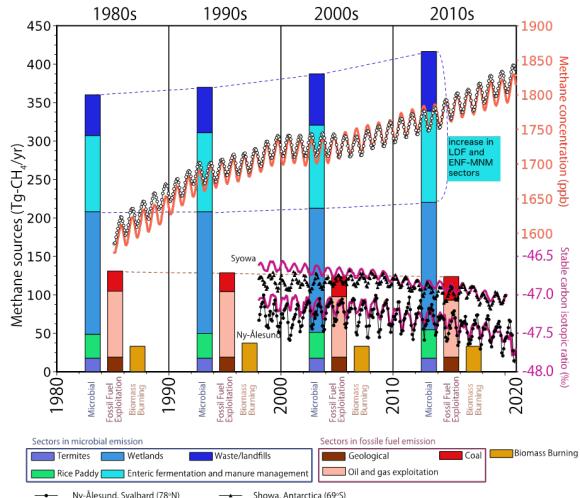
( $\delta^{13}\text{C-CH}_4$ ) [6]. Globally, the mean atmospheric  $\delta^{13}\text{C-CH}_4$  source value ranges between  $-54\text{\textperthousand}$  and  $-52\text{\textperthousand}$ , and after accounting for the effects of chemical sinks, the isotopic composition converges to approximately  $-47\text{\textperthousand}$ . Microbial sources such as wetlands, landfills, and enteric fermentation emit CH<sub>4</sub> with isotopically lighter  $\delta^{13}\text{C-CH}_4$  values (lower than  $-47\text{\textperthousand}$ ), while thermogenic sources, including fugitive emissions from the oil, natural gas, and coal sectors, are characterized by isotopically heavier  $\delta^{13}\text{C-CH}_4$  signatures (Fig. 1).



**Figure 1. Conceptual framework of CH<sub>4</sub> isotope modeling.** The stable carbon isotope ratio ( $\delta^{13}\text{C}$ ) represents the relative difference in the abundance of carbon isotopes in a molecule compared to a standard reference. Each methane source is characterized by a distinct  $\delta^{13}\text{C}$  signature, enabling the estimation of total methane emissions and source contributions.

We develop the isotope module in MIROC4-Actm for simulating the history of atmospheric  $\delta^{13}\text{C-CH}_4$  and CH<sub>4</sub> from 1970 to 2020 [4]. Our analysis highlights key discrepancies between observed atmospheric CH<sub>4</sub> and  $\delta^{13}\text{C-CH}_4$  trends and estimates based on various inventories. For instance, the EDGARv6 inventory, which indicates consistent increases in microbial and fossil fuel emissions from 1985–2020, fails to reproduce the observed trends. Conversely, the GAINSv4 inventory, which accounts for

declining fossil fuel emissions between 1990 and 2004 and stabilization thereafter (after excluding unconventional emissions post-2006) (Fig. 2), successfully captures both the observed trends and the latitudinal/vertical distributions of atmospheric CH<sub>4</sub> and δ<sup>13</sup>C-CH<sub>4</sub> (Fig. 2).



**Figure 2. Attribution of global CH<sub>4</sub> and δ<sup>13</sup>C-CH<sub>4</sub> trends to emission sources.** Emissions are categorized into three subcategories: microbial, fossil fuel, and biomass burning. Monthly mean CH<sub>4</sub> concentrations (circles for observations and solid lines for model simulations) represent the Southern Hemisphere. Observed δ<sup>13</sup>C-CH<sub>4</sub> values from the Northern Hemisphere (▲ Ny-Ålesund, Svalbard) and Southern Hemisphere (● Syowa, Antarctica), measured by Tohoku University (TU) and the National Institute of Polar Research (NIPR), are compared with model simulations (purple line).

A closer examination reveals nuanced changes within the fossil fuel sector. Declining emissions from the oil and natural gas (ONG) sector during 2000–2010, combined with a rise and subsequent fall in coal-related emissions between 2000 and 2012, contributed to the stable trend in fugitive fossil fuel emissions during this period (Fig. 2). In contrast, microbial emissions increased by approximately 27 TgCH<sub>4</sub> yr<sup>-1</sup> between 1990 and 2020, driven primarily by expanded cattle rearing in Latin America and increased waste-related emissions in rapidly developing regions such as China, India, Southeast Asia, Latin America, and Africa (Fig. 2).

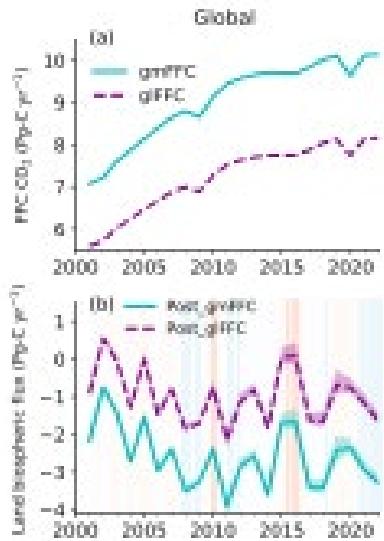
In conclusion, our findings underscore that the rise in microbial emissions—dominated by agricultural activities and landfill sources—has been the primary driver of atmospheric CH<sub>4</sub> trends over the past three decades. These results are recently published in *Communications Earth & Environment* journal [4].

## 2.2 Impact of Fossil CO<sub>2</sub> Emission Uncertainty on Inversion-Estimated Fluxes

Realistic estimates of trends and variability in the global carbon source-sink balance are essential for determining the remaining carbon budget required to limit global warming to 1.5°C or 2°C, as outlined by the UN Paris Agreement [1,7,8]. Atmospheric inversion is a powerful tool for inferring CO<sub>2</sub> flux distributions between land, ocean, and atmosphere by integrating atmospheric observations with transport models [3,9,10]. Inversion typically assume fossil CO<sub>2</sub> (FCO<sub>2</sub>) emissions are accurately known, attributing observation-model mismatches exclusively to uncertainties in natural fluxes. However, this assumption neglects uncertainties in FCO<sub>2</sub> emissions, particularly in major emitting regions like China, where reported emissions can vary by 14–18% due to inconsistencies in energy-use statistics [8,11,12]. This oversight introduces biases in inversion-derived posterior flux estimates.

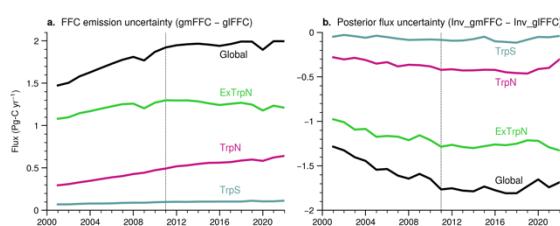
Although previous studies have addressed FCO<sub>2</sub> emission uncertainties to some extent [9,13], spatially and temporally explicit analyses remain limited. These gaps are especially significant for periods of rapid FCO<sub>2</sub> growth in the 2000s and subsequent slowdowns in the 2010s (Fig. 3a). This limitation stems largely from the absence of formal uncertainty estimates in traditional FCO<sub>2</sub> emission inventories. The recent Gridded Fossil Emissions Dataset (GridFED) addresses this gap, providing spatially explicit uncertainty estimates across major sectors—coal, oil, gas, and cement [14], enabling a more comprehensive assessment of the impact of FCO<sub>2</sub> uncertainties on posterior flux estimates.

Using GridFEDv2023.1, we constructed two FCO<sub>2</sub> emission scenarios: (1) a central estimate (gmFCO<sub>2</sub>), aggregating emissions across all sectors, consistent with Friedlingstein et al. [8], and (2) a lower-bound scenario incorporating sector-specific uncertainty adjustments ( $glFCO_2 = \sum_i (gmFCO_{2i} - Unc_i)$ ; i = coal, oil, gas, cement) at the original grid resolution (Fig. 4a). These prior FCO<sub>2</sub> cases are used to prepare two sets of atmospheric inversions (Post\_gmFCO<sub>2</sub> and Post\_glFCO<sub>2</sub>), driven by in-situ measurements from 50 global observation sites and the MIROC4-ACTM-based inversion system.



**Figure 3. Impact of global fossil-fuel CO<sub>2</sub> (FCO<sub>2</sub>) emissions on inversion-estimated land biospheric CO<sub>2</sub> fluxes.** (a) Temporal evolution of global FCO<sub>2</sub> emissions under two emission scenarios. (b) Corresponding effects on inversion-estimated land biospheric CO<sub>2</sub> fluxes, where negative values represent a net carbon sink and positive values represent a net source. Background shading in panel (b) depicts the Multivariate ENSO Index (MEI), with orange indicating El Niño phases and blue indicating La Niña phases.

To align with observed near-surface CO<sub>2</sub> concentrations, the inversions estimated a larger land-biospheric CO<sub>2</sub> sink under the central FCO<sub>2</sub> case (gmFCO<sub>2</sub>) than the lower-bound case (glFCO<sub>2</sub>) (Fig. 3a, b). Globally, potential uncertainty in FCO<sub>2</sub> emissions (2001–2022) resulted in a difference of 1.65 PgC yr<sup>-1</sup> in inversion-derived land-biospheric fluxes, while oceanic CO<sub>2</sub> fluxes were largely unaffected. These biases arise because FCO<sub>2</sub> emissions are concentrated over land, causing compensatory errors in land-biospheric sink estimates.



**Figure 4. Global and sub-hemispheric impacts of FCO<sub>2</sub> emission differences on land biospheric CO<sub>2</sub> flux estimates.** (a) Differences in fossil CO<sub>2</sub> emissions (gmFCO<sub>2</sub> – glFCO<sub>2</sub>) at global and sub-hemispheric scales. (b) Resulting uncertainty in land biospheric CO<sub>2</sub> fluxes (posterior flux) estimated through inverse modeling. A

pronounced dipole relationship is observed during 2001–2011, where increasing FCO<sub>2</sub> biases amplify the divergence between central and lower-bound flux estimates.

The uncertainty in FCO<sub>2</sub> emissions increased over time, particularly due to the rising share of emissions from developing countries, notably China (Fig. 4a). Between 2001 and 2011, FCO<sub>2</sub> uncertainties grew rapidly (~0.5 PgC), driven by China's emissions. This trend stabilized post-2011 due to slower global economic growth (from 4% yr<sup>-1</sup> in the 2000s to 3% yr<sup>-1</sup> in the 2010s) and the adoption of green energy technologies in emerging economies like India and China [8]. The distinct divergence in FCO<sub>2</sub> growth rates between 2001–2011 and 2011–2022 (Fig. 4a) translated into significant differences in inversion-derived land biospheric flux trends. During 2001–2011, rapid increases in FCO<sub>2</sub> uncertainties caused a faster increase in the estimated global land-biospheric sink under the central FCO<sub>2</sub> case compared to the lower-bound case (Fig. 4b). After 2012, stabilization in FCO<sub>2</sub> differences led to a systematic bias of -1.73 PgC yr<sup>-1</sup> in land-biospheric flux estimates, in contrast to the rapid increase in bias during 2001–2011 (Fig. 4b). This highlights the critical impact of FCO<sub>2</sub> uncertainty on both the growth rate and magnitude of inversion-derived land-biospheric fluxes. Given the widespread use of inversion fluxes for DGVM and ESM evaluation [15–17], correcting these emission biases is essential for advancing carbon cycle research.

The central CO<sub>2</sub> inversion case (Post\_gmFCO<sub>2</sub>) has also contributed to several international research activities, including assessments of global and regional carbon budgets under the Global Carbon Project [8,18–20], improved understanding of sub-hemispheric carbon budgets[15,16], and explanations for latitudinal [21] as well as observed CO<sub>2</sub> variability at select sites in South Asia [22,23].

## Acknowledgement

This research was supported by the Environment Research and Technology Development Fund (grant no. JPMEERF24S12205) (Ministry of the Environment, Japan) project and Arctic Challenge for Sustainability II (ArCS-II) project (grant no. JPMXD1420318865), funded by Japan's Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology (MEXT).

## References

- [1] Canadell, J. G. et al., “Global carbon and other biogeochemical cycles and feedbacks”, In Climate Change 2021: The Physical Science Basis. Contribution of WG I to the AR6 of the IPCC (2021).

- [2] Chandra, N. et al., “Emissions from the Oil and Gas Sectors, Coal Mining and Ruminant Farming Drive Methane Growth over the Past Three Decades”, *J. Meteor. Soc. Jpn.*, 99(2) (2021).
- [3] Chandra, N. et al., “Estimated regional CO<sub>2</sub> flux and uncertainty based on an ensemble of atmospheric CO<sub>2</sub> inversions”, *Atmos. Chem. Phys.*, 22, 9215–9243 (2022).
- [4] Chandra, N. et al., “Methane emissions decreased in fossil fuel exploitation and sustainably increased in microbial source sectors during 1990–2020”, *Commun. Earth Environ.*, 5, 1–15 (2024).
- [5] Patra, P. K. et al., “Improved Chemical Tracer Simulation by MIROC4.0-based Atmospheric Chemistry-Transport Model (MIROC4-ACTM)”, *SOLA*, 14, 91–96 (2018).
- [6] Sherwood, O. A., Schwietzke, S., Arling, V. A. & Etiope, G., “Global Inventory of Gas Geochemistry Data from Fossil Fuel, Microbial and Burning Sources, version 2017”, *Earth Syst. Sci. Data*, 9, 639–656 (2017).
- [7] Bustamante, M. et al., “Ten New Insights in Climate Science 2023/2024”, *Global Sustainability*, 1–58, doi:10.1017/sus.2023.25 (2023).
- [8] Friedlingstein, P. et al., “Global Carbon Budget 2023”, *Earth Syst. Sci. Data*, 15, 5301–5369 (2023).
- [9] Saeck, T. & Patra, P. K., “Implications of overestimated anthropogenic CO<sub>2</sub> emissions on East Asian and global land CO<sub>2</sub> flux inversion”, *Geosci. Lett.* 4(9) (2017).
- [10] Gurney, K. R. et al., “Towards robust regional estimates of CO<sub>2</sub> sources and sinks using atmospheric transport models”, *Nature*, 415, 626–630 (2002).
- [11] Guan, D., Liu, Z., Geng, Y., Lindner, S. & Hubacek, K., “The gigatonne gap in China’s carbon dioxide inventories”, *Nature Clim. Change*, 2, 672–675 (2012).
- [12] Han, P. et al., “Evaluating China’s fossil-fuel CO<sub>2</sub> emissions from a comprehensive dataset of nine inventories”, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 11371–11385 (2020).
- [13] Oda, T., Feng, L., Palmer, P. I., Baker, D. F. & Ott, L. E., “Assumptions about prior fossil fuel inventories impact our ability to estimate posterior net CO<sub>2</sub> fluxes that are needed for verifying national inventories”, *Environ. Res. Lett.* 18, 124030 (2023).
- [14] Jones, M.W., et al., “Gridded fossil CO<sub>2</sub> emissions and related O<sub>2</sub> combustion consistent with national inventories 1959–2018”, *Sci Data* 8, 2 (2021).
- [15] Liu, Z. et al., “Respiratory loss during late-growing season determines the net carbon dioxide sink in northern permafrost regions”, *Nat. Commun.*, 13, 5626 (2022).
- [16] O’Sullivan, M. et al., “The key role of forest disturbance in reconciling estimates of the northern carbon sink”, *Commun. Earth Environ.*, 5, 1–10 (2024).
- [17] Patra, P. K. et al., “Evaluation of earth system model and atmospheric inversion using total column CO<sub>2</sub> observations from GOSAT and OCO-2”, *Prog. Earth Planet. Sci.*, 8, 25 (2021).
- [18] Friedlingstein, P. et al., “Global Carbon Budget 2024”, *Earth Syst. Sci. Data Discuss.*, 1–133, doi:10.5194/essd-2024-519 (2024).
- [19] Wang, X. et al., “The Greenhouse Gas Budget of Terrestrial Ecosystems in East Asia Since 2000”, *Global Biogeochem. Cy.* 38, e2023GB007865 (2024).
- [20] Hugelius, G. et al., “Permafrost Region Greenhouse Gas Budgets Suggest a Weak CO<sub>2</sub> Sink and CH<sub>4</sub> and N<sub>2</sub>O Sources, But Magnitudes Differ Between Top-Down and Bottom-Up Methods”, *Global Biogeochem. Cy.* 38, e2023GB007969 (2024).
- [21] Das, C. et al., “Meridional Propagation of Carbon Dioxide (CO<sub>2</sub>) Growth Rate and Flux Anomalies From the Tropics Due to ENSO”, *Geophys. Res. Lett.*, 49, e2022GL100105 (2022).
- [22] Uma, K. N. et al., “CO<sub>2</sub> variability over a tropical coastal station in India: Synergy of observation and model”, *Sci. Total Environ.*, 957, 177371 (2024).
- [23] Pathakoti, M. et al., “Neighbouring effect of land use changes and fire emissions on atmospheric CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> over suburban region of India (Shadnagar)”, *Sci. Total Environ.*, 921, 171226 (2024).