

2020年度堀内賞の受賞者決まる

受賞者：牛尾知雄（大阪大学大学院工学研究科）

研究業績：降水観測の時空間解像度向上への技術的貢献

選定理由：

近年、日本各地で突発的な局地的豪雨による甚大な被害が多発している。従来の気象レーダーは、パラボラアンテナを機械的に上下方向に角度を変え、回転させて降雨観測を行うため、地上付近の降雨分布観測には1～5分、降水の3次元立体観測には5分以上の時間を要し、局所的で突発的な大気現象の詳細な構造や、前兆現象を捉えることができなかった。このような状況に対して牛尾知雄氏は、電子的なフェーズドアレイ方式の走査方法を採用したXバンドフェーズドアレイドップラーレーダーの開発に取り組み、1次元アレイと水平回転を組み合わせた気象レーダーとしての具体的な仕様の策定と実用化において中心的な役割を果たした。このレーダーは2012年に大阪大学に、また2015年には気象研究所に設置され、今までのレーダーでは得られなかった新しい成果をもたらした。たとえば、半径約15kmから60km、高度15kmまでの範囲における隙間のない詳細な3次元降水分布、あるいは降水粒子群の落下を、10秒から30秒の時間間隔で観測することを可能にした（業績5, 9, 10, 11）。さらに、デジタルビームフォーミング技術の導入によって、半径60km圏内の降水システム3次元構造を100段階の仰角にわたって密に捉えることを可能にし、今までの技術では観測不可能であった、上空で降水コアが形成されて数分間で地上に達していく様子を可視化する事に成功した（15, 16, 17）。また、このような高速観測は雷の研究にも貢献できることを示した（8）。このように、牛尾氏は、従来の気象レーダーではスナップショット的にしか捉えることができなかった、局所的で突発的な大気現象の発生から発達、そして消滅までを逐次観測することを実現し、気象レーダーの観測を飛躍的に向上させることに大きく貢献した。

これらの成果はアメリカ地球物理学会のResearch SpotlightとしてGeophysical Research Lettersに掲載されるとともに（6）、テレビ・新聞の各種メディアに取り上げられ、さらに平成28年以

降の中学校理科用の文部科学省検定済教科書（未来へひろがるサイエンス2, p.116, 啓林館）に掲載された。本レーダーの社会実装に向けた実証実験は内閣府の戦略的イノベーション創造プログラム（SIP）によって推進され、さらに進化したマルチパラメーター・フェーズドアレイ気象レーダーの開発へとつながり、竜巻、突風、豪雨などの観測でその有効性を示した。さらに、スーパーコンピューター「京」との連携によるゲリラ豪雨予測手法の開発に貢献するなど、その波及効果も大きいことが認められる（12, 13, 14）。

牛尾氏は、降水の衛星観測における時空間解像度改良にも大きな貢献をしている。熱帯降雨観測衛星TRMMの実現により、NASAのTMPAやNOAAのCMORPHなど、衛星降水プロダクトの開発が世界的に加速した。このような状況の中、牛尾氏は、低軌道衛星搭載マイクロ波放射計と静止気象衛星搭載赤外放射計を組み合わせた衛星降水プロダクトの高時空間分解能化の課題に取り組んだ（1）。連続する赤外面像から算出される雲移動ベクトルによってマイクロ波放射計で推定された降雨量を移動させる手法がCMORPHに導入されていたが、牛尾氏はさらに、移動された降雨量をカルマンフィルターによって補正する手法を導入して1時間・0.1度分解能の衛星全球降水マップGSMaPの作成に貢献し、レーダーアメダス及び他の衛星降水プロダクトと比較した評価の結果、カルマンフィルターを用いた場合の方が、用いない場合に比べて高精度であることを明らかにした（2, 3）。この成果以降、NOAAのCMORPHにもカルマンフィルターが導入され、NASAにおいてはTMPAからI-MERGに開発が移行してカルマンフィルターが導入されるなど、これらの成果は、この分野の世界的な潮流をもたらしたと言える。特に業績（2）の論文の影響の大きさは、被引用数が日本気象学会気象集誌に掲載された歴代の論文の中で第24位であり、2000年以降に限れば第9位というその高さにも示されている（2020年3月時点、http://jmsj.metsoc.jp/most_cited/index.html）。以上のように、時空間解像度が飛躍的に改善されたGSMaPは、「世界の雨分布速報」（http://sharaku.eorc.jaxa.jp/GSMaP/index_

j.htm) として JAXA から準リアルタイムでデータ配信されており (4, 7), 研究利用だけではなく, インドネシア, ベトナム, フィリピン等の気象局では防災のために現業利用されている. とりわけ地上設置レーダ観測が不十分で頻発する豪雨に伴う洪水などの水災害に苦しむアジア域に, 高精度で速報性が高い降水量データの提供を実現したことは評価できる.

以上のように, 牛尾氏は, 工学的な知識とアイデアを活かし技術的な側面から降水観測の時空間解像度の向上に大きく貢献し, それによって降水に関する研究は新たな時代を迎えたと言える. これらの業績は, 気象学の未開拓分野における研究により, 気象学および気象技術の発展・向上に大きな影響を与えているものと認められる.

以上の理由により, 日本気象学会は牛尾知雄氏に2020年度堀内賞を贈呈するものである.

略語一覧

CMORPH : Climate Prediction Center Morphing Technique

GSMaP : Global Satellite Mapping of Precipitation

I-MERG : Integrated Multi-satellite Retrievals for GPM

JAXA : Japan Aerospace Exploration Agency

NASA : National Aeronautics and Space Administration

NOAA : National Oceanic and Atmospheric Administration

SIP : Cross-ministerial Strategic Innovation Promotion Program

TMPA : TRMM Multisatellite Precipitation Analysis

TRMM : Tropical Rainfall Measuring Mission

主な論文リスト

- Ushio, T., D. Katagami, K. Okamoto and T. Inoue, 2007: On the use of split window data in deriving the cloud motion vector for filling the gap of passive microwave rainfall estimation. *SOLA*, **3**, 1-4, doi:10.2151/sola.2007-001.
- Ushio, T., K. Sasashige, T. Kubota, S. Shige, K. Okamoto, K. Aonashi, T. Inoue, N. Takahashi, T. Iguchi, M. Kachi, R. Oki, T. Morimoto and Z. Kawasaki, 2009: A Kalman filter approach to the Global Satellite Mapping of Precipitation (GSMaP) from combined passive microwave and infrared radiometric data. *J. Meteor. Soc. Japan*, **87A**, 137-151.
- Kubota, T., T. Ushio, S. Shige, S. Kida, M. Kachi and K. Okamoto, 2009: Verification of high resolution satellite-based rainfall estimates around Japan using a gauge-calibrated ground radar dataset. *J. Meteor. Soc. Japan*, **87A**, 203-222.
- 可知美佐子, 久保田拓志, 牛尾知雄, 重 尚一, 木田智史, 青梨和正, 岡本謙一, 沖 理子, 2011: 複数の衛星搭載マイクロ波/赤外放射計の複合による「世界の雨分布速報」システムの構築とその利用. *電気学会 A 部門誌*, **131**, 729-737.
- Yoshikawa, E., T. Ushio, Z. Kawasaki, S. Yoshida, T. Morimoto, F. Mizutani and M. Wada, 2013: MMSE beam forming on fast-scanning phased array weather radar. *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, **51**, 3077-3088.
- Wu, T., Y. Takayanagi, S. Yoshida, T. Funaki, T. Ushio and Z. Kawasaki, 2013: Spatial relationship between lightning narrow bipolar events and parent thunderstorms as revealed by phased array radar. *Geophys. Res. Lett.*, **40**, 618-623, doi:10.1002/grl.50112, Selected as an "AGU Research Spotlight"
- Taniguchi, A, S. Shige, M. K. Yamamoto, T. Mega, S. Kida, T. Kubota, M. Kachi, T. Ushio and K. Aonashi, 2013: Improvement of high-resolution satellite rainfall product for Typhoon Morakot (2009) over Taiwan. *J. Hydrometeorol.*, **14**, 1859-1871.
- Ushio, T., T. Wu and S. Yoshida, 2015: Review of recent progress in lightning and thunderstorm detection techniques in Asia. *Atmos. Res.*, **154**, 89-102.
- Ruiz, J., T. Miyoshi, S. Satoh and T. Ushio, 2015: A quality control algorithm for the Osaka phased array weather radar. *SOLA*, **11**, 48-52, doi:10.2151/sola.2015-011.
- Adachi, T., K. Kusunoki, S. Yoshida, H. Inoue, K. Arai and T. Ushio, 2016: Rapid volumetric growth of mesocyclone and vault-like structure in horizontal shear observed by phased array weather radar. *SOLA*, **12**, 314-319, doi:10.2151/sola.2016-061.
- Adachi, T., K. Kusunoki, S. Yoshida, K. Arai and T. Ushio, 2016: High-speed volumetric observation of wet microburst using X-band phased array weather radar in Japan. *Mon. Wea. Rev.*, **144**, 3749-3765, doi:10.1175/MWR-D-16-0125.1.
- Otsuka, S., G. Tuerhong, R. Kikuchi, Y. Kitano, Y. Taniguchi, J. J. Ruiz, S. Satoh, T. Ushio and T. Miyoshi, 2016: Precipitation nowcasting with three-dimensional space-time extrapolation of dense and frequent phased-array weather radar observations. *Wea. Forecast.*, **31**, 329-340, doi:10.1175/WAF-D-15-0063.1.

13. Miyoshi, T., M. Kunii, J. Ruiz, G. Lien, S. Satoh, T. Ushio, K. Bessho, H. Seko, H. Tomita and Y. Ishikawa, 2016: "Big Data Assimilation" revolutionizing severe weather prediction. *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, **97**, 1347-1354, doi:10.1175/BAMS-D-15-00144.1.
14. Miyoshi, T., G. Lien, S. Satoh, T. Ushio, K. Bessho, H. Tomita, S. Nishizawa, R. Yoshida, S. Adachi, J. Liao, B. Gerofi, Y. Ishikawa, M. Kunii, J. Ruiz, Y. Maejima, S. Otsuka, M. Otsuka, K. Okamoto and H. Seko, 2016: "Big Data Assimilation" toward post-petascale severe weather prediction: An overview and progress. *Proc. IEEE*, **104** (11), 1-25. (Invited paper)
15. Kikuchi, H., E. Yoshikawa, T. Ushio, F. Mizutani and M. Wada, 2017: Application of adaptive digital beamforming to Osaka university phased array weather radar. *IEEE. Trans. Geosci. Remote. Sens.*, **99**, doi: 10.1109/TGRS.2017.2682886.
16. Kikuchi, H., T. Wu, E. Yoshikawa, T. Ushio, H. Goto, F. Mizutani, M. Wada and V. Chandrasekar, 2017: Performance of minimum mean-square error beamforming for polarimetric phased array weather radar. *IEEE. Trans. Geosci. Remote. Sens.*, **55**, 2757-2770, doi:10.1109/TGRS.2017.2653816.
17. Mizutani, F., T. Ushio, E. Yoshikawa, S. Shimamura, H. Kikuchi, M. Wada, S. Satoh and T. Iguchi, 2018: Fast-scanning phased array weather radar with angular imaging technique. *IEEE. Trans. Geosci. Remote. Sens.*, **56**, 2664-2673, doi:10.1109/TGRS.2017.2780847.

受賞者: 須藤健悟 (名古屋大学大学院環境学研究所)

研究業績: 化学気候モデルの開発と大気環境・気候変動研究の推進

選定理由:

人類が直面しているグローバルな環境問題として、1) 地球温暖化(気候変動)、2) 越境大気汚染、3) 成層圏オゾンの減少が挙げられる。いずれにおいても、二酸化炭素、メタン、オゾン、硫黄・窒素酸化物、およびエアロゾルなど、大気中の微量成分が重要な役割を果たしている。また、このような物質を介して、それぞれの環境問題が三つ巴的に相互作用する点も重要である。須藤健悟氏は、グローバルな環境問題の定量的理解の向上、および将来予測のため、このような相互作用を含め、3つの環境問題に幅広く対応するため、大気中の物質と関連する物理化学過程や輸送過程、および気候影響過程を扱うことのできる化学・輸送・気候モデルの開

発・応用を主軸として、研究を展開してきた。

須藤氏はこれまで一貫して、大気化学およびエアロゾルの各過程が含まれた大気化学気候モデル CHASER の開発に従事してきた(業績 1, 2, 4)。本モデルにおいては、気候モデル MIROC を土台とし、対流圏・成層圏オゾン化学およびエアロゾルの詳細なオンライン計算を導入し、国際的にも認知度・評価が高く、日本を代表する化学気候モデルとして熟成させ、各種大気成分の全球分布・変動のシミュレーションや放射強制力・気候変動の評価を実施してきた。須藤氏は、大気汚染の半球～全球的広がりやを定量的に解明するため、CHASER にタグトレーサーを実装し、各種汚染物質(オゾン、一酸化炭素、黒色炭素(BC))の全球分布について、その起源を推定するシミュレーション方法を開発した(4)。タグトレーサー実験では、各種汚染・ソース領域から遠隔地・全球領域への輸送・拡散を、大気中の化学変化も加味しながら計算することが可能であり、各種物質の全球分布について「どこから、どれくらい、どのように、やってくるのか?」ということや文字通り検討することができる。さらに須藤氏の研究により、エアロゾル計算については、硝酸塩、アンモニウムイオンの生成過程、生物起源揮発性有機化合物(BVOCs)からの二次有機エアロゾル(SOA)生成の計算がオンラインで導入され、BCの大気中の変質過程や硫酸成分とダスト粒子との相互作用などについても、化学過程を完全に考慮した計算が実現された。また、CHASER は、大気微量成分の衛星観測を用いたデータ同化システム(CHASER-DAS)に応用され(10, 14)、窒素酸化物やエアロゾル等の重要な汚染物質について、それらの排出量の全球分布や経年変動の高精度推定に大きく貢献した(17)。さらに、CHASER を土台として、地球システムモデル MIROC-ESM の構築を進めており(7)、土地利用や生態系の変化が BVOCs・SOA を介して大気や気候に及ぼす影響の評価(8)や陸域生態系・大気化学・気候相互作用の評価などに発展させた。MIROC-ESM は成層圏・対流圏の物質循環を最新の知見に基づき最大限表現可能であるため、火山性エアロゾルによる影響評価を精緻化する研究(16)にも応用されている。

須藤氏は、上記のような全球モデリングを通じ、大気化学と気候の相互作用に関する研究を推進・牽引してきた。まず気候(気象場)の変動が大気化学

過程に及ぼす影響として1997年エルニーニョ現象時に観測された大規模な対流圏オゾン変動に着目し、CHASERを用いて再現実験を試みた(2)。この実験では衛星で観測されたオゾン変動の再現に成功すると同時にENSOの海面水温変動に伴う対流パターンや水蒸気分布の変化が熱帯域のオゾン輸送・光化学に著しく影響を与えていたことを世界で初めて示し、そのメカニズムを解明した。また、EOF解析を適用し、全球オゾン分布に見られる変動は基本的にはENSO、北極振動(AO)、およびインド洋ダイポールモード(IOD)で説明できることを示した(11)。ENSOの影響については、独自に行っているタグトレーサー実験(4)を応用した画期的な手法により、大気輸送変動および大気化学変動(主に水蒸気による)がそれぞれどのようにオゾン変動に寄与するか分離・定量化することに成功している(13)。CHASERによるタグトレーサー計算は、下流域での観測データの解釈や越境汚染の推定にも応用され(5, 6)、極域を含む遠隔地域へのBCの長距離輸送の評価等にも利用されている。さらに、将来の温暖化がオゾン化学場に与える影響についての予測実験を行い、温暖化に伴う成層圏・対流圏循環の変動(特にブリューワー・ドブソン循環の強化)が成層圏から対流圏へのオゾン輸送量を増加させ、成層圏・対流圏のオゾン分布に顕著な影響を及ぼす可能性があることを世界に先駆けて示し(3)、排出シナリオごとの検討(9)も行った。

以上のような化学・気候相互作用の観点から、須藤氏はモデル間相互比較プロジェクトであるACCMIP, AeroCOM, CCMI, AerChem-MIPなどにも積極的に参加しており、過去・現在・将来にわたる大気微量成分(オゾン, メタン, およびエアロゾル)の全球変動と気候影響を定量的に解明・予測する研究にも大いに貢献している(12)。また、汚染物質の半球間輸送に関する国際プロジェクトHTAP-I, IIにも継続的に参加してきており、各種汚染物質の長距離輸送やその気候影響および健康影響の評価に大きく貢献している(18)。さらに、短寿命気候汚染物質(SLCPs)に着目して、メタン・オゾン, およびエアロゾルの削減で温暖化と大気汚染を同時に緩和させるエミッション削減策の開発に参加し、大気中の化学反応への影響も考慮した正確かつ詳細な削減シナリオの策定に貢献した(15)。

須藤氏は、日本大気化学会・運営委員や日本気象

学会・気象集誌編集委員等を歴任してきたほか、わが国における大気化学気候モデリングの第一人者として日本学術会議のIGACおよびiLEAPSの各小委員会委員や、IGAC/SPARCの国際プロジェクトCCMIの運営委員を務めるとともに、IPCC等の国際プログラムにおいて国内外の研究機関と幅広い共同研究を行ってきており、物質循環研究や大気化学気候モデリング研究を牽引している。

以上のように、須藤氏は、大気化学・気候相互作用研究を開拓・牽引し、物質循環を軸として、気象学の周辺領域の拡充に大きく貢献してきた。これらの業績は、気象学の発展・向上に大きな影響を与えているものと認められる。

以上の理由により、日本気象学会は須藤健悟氏に2020年度堀内賞を贈呈するものである。

略語一覧

ACCMIP : Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project
 AerChem-MIP : Aerosols and Chemistry Model Intercomparison Project
 AeroCOM : Aerosol Comparisons between Observations and Models
 AO : Arctic Oscillation
 BC : Black Carbon
 BVOCs : Biogenic Volatile Organic Compounds
 CCMI : Chemistry-Climate Model Initiative
 CHASER : CHEMical AGCM for Study of atmospheric Environment and Radiative forcing
 CHASER-DAS : CHASER-Data Assimilation System
 ENSO : El Niño-Southern Oscillation
 EOF : Empirical Orthogonal Function
 HTAP-I, II : Hemispheric Transport of Air Pollution-I, II
 IGAC : International Global Atmospheric Chemistry
 iLEAPS : Integrated Land Ecosystem-Atmosphere Process Study
 IOD : Indian Ocean Dipole
 IPCC : Intergovernmental Panel on Climate Change
 MIROC : Model for Interdisciplinary Research on Climate
 MIROC-ESM : MIROC- Earth System Model
 SLCPs : Short-Lived Climate Pollutants
 SOA : Secondary Organic Aerosol
 SPARC : Stratospheric Processes And their Role in Climate

主な論文リスト

1. Sudo, K., M. Takahashi, J. Kurokawa and H. Akimoto,

- 2002: CHASER: A global chemical model of the troposphere 1. Model description. *J. Geophys. Res.*, **107**, doi:10.1029/2001JD001113.
2. Sudo, K., M. Takahashi and H. Akimoto, 2002: CHASER: A global chemical model of the troposphere 2. Model results and evaluation. *J. Geophys. Res.*, **107**, doi:10.1029/2001/JD001114.
 3. Sudo, K., M. Takahashi and H. Akimoto, 2003: Future changes in stratosphere-troposphere exchange and their impacts on future tropospheric ozone simulations. *Geophys. Res. Lett.*, **30**, 2256, doi:10.1029/2003GL018526.
 4. Sudo, K. and H. Akimoto, 2007: Global source attribution of tropospheric ozone: Long-range transport from various source regions. *J. Geophys. Res.*, **112**, D12302, doi:10.1029/2006JD007992.
 5. Yashiro, H., S. Sugawara, K. Sudo, S. Aoki and T. Nakazawa, 2009: Temporal and spatial variations of carbon monoxide over the western part of the Pacific Ocean. *J. Geophys. Res.*, **114**, D08305, doi:10.1029/2008JD010876.
 6. Nagashima, T., T. Ohara, K. Sudo and H. Akimoto, 2010: The relative importance of various source regions on East Asian surface ozone. *Atmos. Chem. Phys.*, **10**, 11305-11322, doi:10.5194/acp-10-11305-2010.
 7. Watanabe, S., T. Hajima, K. Sudo, T. Nagashima, T. Takemura, H. Okajima, T. Nozawa, H. Kawase, M. Abe, T. Yokohata, T. Ise, H. Sato, T. Kato, K. Takata, S. Emori and M. Kawamiya, 2011: MIROC-ESM 2010: model description and basic results of CMIP5-20c3m experiments. *Geosci. Model Dev.*, **4**, 845-872, doi:10.5194/gmd-4-845-2011.
 8. 須藤健悟, 高田久美子, 竹村俊彦, 神沢 博, 安成哲三, 2010: 植生変化・エアロゾル複合効果がアジアの気候に及ぼす影響の評価. *低温科学*, **68**, 129-136.
 9. Kawase, H., T. Nagashima, K. Sudo and T. Nozawa, 2011: Future changes in tropospheric ozone under Representative Concentration Pathways (RCPs). *Geophys. Res. Lett.*, **38**, L05801, doi:10.1029/2010GL046402.
 10. Miyazaki, K., H. J. Eskes, K. Sudo, M. Takigawa, M. van Weele and K. F. Boersma, 2012: Simultaneous assimilation of satellite NO₂, O₃, CO, and HNO₃ data for the analysis of tropospheric chemical composition and emissions. *Atmos. Chem. Phys.*, **12**, 9545-9579, doi:10.5194/acp-12-9545-2012.
 11. Sekiya, T. and K. Sudo, 2012: Role of meteorological variability in global tropospheric ozone during 1970-2008. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **117**, D18303, doi:10.1029/2012JD018054.
 12. Shindell, D. T., J. F. Lamarque, M. Schulz, M. Flanner, C. Jiao, M. Chin, P. J. Young, Y. H. Lee, L. Rotstayn, N. Mahowald, G. Milly, G. Faluvegi, Y. Balkanski, W. J. Collins, A. J. Conley, S. Dalsoren, R. Easter, S. Ghan, L. Horowitz, X. Liu, G. Myhre, T. Nagashima, V. Naik, S. T. Rumbold, R. Skeie, K. Sudo, S. Szopa, T. Takemura, A. Voulgarakis, J. H. Yoon and F. Lo, 2013: Radiative forcing in the ACCMIP historical and future climate simulations. *Atmos. Chem. Phys.*, **13**, 2939-2974, doi:10.5194/acp-13-2939-2013.
 13. Sekiya, T. and K. Sudo, 2014: Roles of transport and chemistry processes in global ozone change on inter-annual and multidecadal time scales. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **119**, 4903-4921, doi:10.1002/2013jd020838.
 14. Miyazaki, K., H. J. Eskes and K. Sudo, 2015: A tropospheric chemistry reanalysis for the years 2005-2012 based on an assimilation of OMI, MLS, TES and MOPITT satellite data. *Atmos. Chem. Phys.*, **15**, 8315-8348, doi:10.5194/acp-15-8315-2015.
 15. Akimoto, H., J. Kurokawa, K. Sudo, T. Nagashima, T. Takemura, Z. Klimont, M. Amann and K. Suzuki, 2015: SLCP co-control approach in East Asia: Tropospheric ozone reduction strategy by simultaneous reduction of NO_x/NMVOC and methane. *Atmos. Environ.*, **122**, 588-595, doi:10.1016/j.atmosenv.2015.10.003.
 16. Sekiya, T., K. Sudo and T. Nagai, 2016: Evolution of stratospheric sulfate aerosol from the 1991 Pinatubo eruption: Roles of aerosol microphysical processes. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **121**, 2911-2938, doi:10.1002/2015jd024313.
 17. Miyazaki, K., H. Eskes, K. Sudo, K. F. Boersma, K. Bowman and Y. Kanaya, 2017: Decadal changes in global surface NO_x emissions from multi-constituent satellite data assimilation. *Atmos. Chem. Phys.*, **17**, 807-837, doi:10.5194/acp-17-807-2017.
 18. Huang, M., G. R. Carmichael, R. B. Pierce, D. S. Jo, R. J. Park, J. Flemming, L. K. Emmons, K. W. Bowman, D. K. Henze, Y. Davila, K. Sudo, J. E. Jonson, M. T. Lund, G. Janssens-Maenhout, F. J. Dentener, T. J. Keating, H. Oetjen and V. H. Payne, 2017: Impact of intercontinental pollution transport on North American ozone air pollution: An HTAP phase II multi-model study. *Atmos. Chem. Phys.*, **17**, 5721-5750, doi:10.5194/acp-17-5721-2017.