

Influencia de la lucha antigranizo de Aragón (España) en el contenido en plata del medio ambiente I: Precipitación y Suelos.

J. Causapé ⁽¹⁾, J. Pey ⁽²⁾, J.M. Orellana-Macías ⁽¹⁾, J. Reyes ⁽¹⁾

RESUMEN. En algunos países como España el pedrisco es considerado el fenómeno climático más dañino para la agricultura por delante de inundaciones, sequías o heladas. El entorno de la Laguna de Gallocanta (Zaragoza, España) es una de las zonas generadoras de las principales tormentas que azotan el valle del Ebro, y por ello se lleva realizando lucha antigranizo mediante la emisión de yoduro de plata a la atmósfera desde hace medio siglo.

Actualmente existe cierta alarma social por las consecuencias medioambientales que podría tener esta actividad, lo que ha motivado el análisis de la posible influencia de este método de lucha antigranizo sobre el contenido de plata en el medio ambiente, y en concreto, en esta primera parte del estudio, sobre la precipitación desde la atmósfera y los suelos.

Para ello, se analizaron los contenidos de plata en la precipitación (5 localizaciones, 16 muestras en cada una de ellas entre abril de 2017 y marzo de 2019) y en suelos (72 muestras) diferentemente afectados por la red de generadores terrestres del Consorcio Antigranizo de Aragón.

Los resultados muestran que la cantidad de plata recogida tanto en deposición atmosférica como en los suelos de las inmediaciones de los generadores antigranizo es alta ($85 \mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{dia}$ y $10 \text{ mg}/\text{kg}$ suelo) pero que una vez alejados de ellos disminuye considerablemente (en torno a $0,3 \mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{dia}$ y $0,1 \text{ mg}/\text{kg}$ suelo).

(1) Instituto Geológico y Minero de España (IGME)

(2) Instituto Pirenaico de Ecología - CSIC

Al margen de los suelos localizados alrededor de los generadores, el resto no supera el valor de referencia marcado por la legislación para las actividades más restrictivas (1 mg/kg suelo en usos agrícola, ganadero y forestal). No obstante, las comarcas en las cuales se viene realizando lucha antigranizo desde hace varias décadas presentaron un mayor contenido de plata tanto en la precipitación como en sus suelos.

Los niveles de plata en suelos no son elevados, pero la acumulación progresiva en los mismos debería ser estudiada, especialmente en las zonas más propensas a ello, considerando también su posible incorporación a la biota, objeto de estudio de la segunda parte de este trabajo.

ABSTRACT. In several countries, hail is considered as the most harmful climatic phenomenon from an agricultural perspective. The surroundings of the Gallocanta Lake (North-East Spain), is one of the areas where the storms affecting the Ebro Valley are formed. For this reason, silver iodide from hail suppression systems has been emitted to the atmosphere for half a century.

Nowadays, there is an increasing social concern about the potential environmental consequences of this activity, which has promoted the analysis of the influence of hail suppression systems regarding the amount of silver concentration in the ecosystem. This study focuses on silver atmospheric deposition and its accumulation in soils.

To this end, silver concentrations in rainfall (5 gauges, 16 samples per site, from April 2017 to March 2019) and soils (72 samples) distributed across the hail suppression network managed by the Anti-hail Consortium of Aragón, were analysed.

The results show that the amount of silver is much higher in rainfall gauges and soils close to ground-based silver iodide generators (85 $\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{day}$ and 10 mg/kg soil, respectively), but concentrations considerably decrease when samples are collected far from them (downing to 0.3 $\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{day}$ and 0.1 mg/kg soil).

Apart from the samples obtained nearby silver iodide generators, most of the other soil samples display silver concentrations below the legal threshold established for the most vulnerable activities (1 mg/kg soil in agricultural and forestry land uses). Nevertheless, silver content, both in precipitation and in soils, is higher in regions where hail suppression has been developed for decades when compared to nearby areas in which silver iodide emissions did not occur.

Silver content observed in soils is not high, but their cumulative effect in sediments and biota should be analysed, which is the aim of the second part of the present study.

Introducción

Los fenómenos climáticos siempre han sido el gran enemigo de la agricultura. Entre los más adversos, el pedrisco es responsable del 40% de los siniestros declarados por los seguros agrarios, en países que como España, existe un elevado riesgo de este fenómeno meteorológico (www.agroseguro.es).

El granizo se genera en nubes convectivas de gran desarrollo vertical, especialmente en los cumulonimbos característicos de las tormentas (Vujovic y Protic, 2017). Pero, mientras las tormentas cubren de lluvia extensiones de 50 a 500 km², el área afectada por el granizo es tan solo de 30 a 50 km² como máximo, y su duración rara vez sobrepasa los 15 minutos (Font, 2000).

La presencia de formas de relieve que provocan ascensos del aire, e inestabilidad, es otro factor clave para el establecimiento de áreas proclives a la incidencia del granizo, siendo las áreas deprimidas y los valles las zonas donde los efectos son más perjudiciales (Font, 2000).

Además, es un fenómeno que se ha dado a lo largo de toda la historia y ancho del planeta, desde la peor granizada registrada en Moradabad (India), el 30 de abril de 1888 con 246 personas muertas por impacto del granizo (De et al., 2005), hasta las frecuentes e intensas pedregadas de Mendoza (Argentina), donde se producen pérdidas en producción primaria valoradas con un promedio anual de 80 millones de dólares (Pérez, 2007).

En España, la zona más afectada es el nordeste de la Península Ibérica donde las pérdidas económicas ocasionadas por el granizo equivalen al 10% de la producción agraria (López et al., 2001). Según García-Ortega et al. (2014), el valle del Ebro registró 50 días de tormentas en 2006, siendo la media para el periodo 2001-2010 de 32,6 tormentas/año. La media de granizadas fue cuantificada por Pascual (2002) para esta zona en 9,4 días al año entre los meses de mayo a septiembre y con mayor ocurrencia después del máximo de irradiación solar (16:00 UTC).

En este contexto, el cambio climático puede incrementar la formación de granizo ya que se ha demostrado que un incremento en la temperatura media de las mínimas va acompañado de un aumento de la frecuencia de tormentas y por tanto de la posibilidad de que se forme granizo. Así pues, Dessens (1995) cuantificó en Francia durante el periodo 1946-1992 que por cada grado que se incrementaba la temperatura media de las mínimas, aumentaba un 40% los daños por granizo.

Burgaz (2009) sostiene que el seguro agrario es el modelo más adecuado para la gestión de riesgos y es el que ha alcanzado un mayor grado de desarrollo y de aceptación entre los agricultores. No obstante, el ser humano siempre ha querido dominar el clima y en base a ello han surgido numerosas iniciativas.

Desde mediados del siglo pasado se han diseñado sistemas para la lucha antigranizo en todo el mundo: Francia (Dessens 1998), Estados Unidos (Henderson, 2006), China

(Wang et al., 2006) o Israel (Levin, 2011). Ya Esteban (1975) describe como muchos de estos sistemas se basan en la siembra de nubes mediante la emisión a la atmósfera de yoduro de plata que pueda actuar multiplicando los núcleos de condensación para la formación de granizo y con ello conseguir reducir su tamaño y efectos dañinos. Estos sistemas se han desarrollado en muchas regiones con alto riesgo de granizadas emitiendo yoduro de plata a la atmósfera mediante cohetes (Abshaev et al. 2006), generadores terrestres (Dessens, 2016) o incluso avionetas (Mather et al., 1997; Krauss y Santos, 2003; Wang et al., 2006).

Los ciclos biogeoquímicos de la plata incluyen su liberación a la atmósfera, el agua o los suelos a partir de fuentes naturales y antropogénicas. Una vez en la atmósfera, el transporte a larga distancia de partículas finas redistribuye estas partículas, que finalmente son depositadas por vía húmeda o seca sobre masas de agua o en suelos y sedimentos (ATSDR, 1990). Se ha cuantificado que alrededor del 50% de la plata liberada a la atmósfera por las operaciones industriales se transporta más de 100 km y finalmente se deposita gracias a las precipitaciones (ATSDR, 1990). Igualmente, los eventos de siembra a favor del viento dispersan los residuos de plata a varios cientos de kilómetros (Freeman, 1979).

La plata en los suelos se inmoviliza en gran medida por precipitación en sales insolubles y por complejación o adsorción por materia orgánica, arcillas y óxidos de hierro y manganeso (Smith y Carson, 1977). No en vano, ya se ha demostrado que las emisiones de plata de las centrales eléctricas de carbón pueden generar acumulaciones en suelos cercanos (Fowler y Nordberg, 1986).

No obstante, pocos países han legislado el contenido de plata en sus suelos. En España, sólo algunas Comunidades Autónomas asignan niveles de referencia para diferentes usos. En el caso de Aragón, se establecen los niveles genéricos de referencia para la protección de la salud humana de metales pesados en los suelos en base al informe del IGME (2008) donde se determinan los niveles de fondo para diferentes metales (BOA, 2008). Dicho estudio y su trasposición a la legislación establece el valor de referencia VR90 de plata en suelos de Aragón en 0,97 mg/kg suelo y niveles genéricos de referencia de 1 mg/kg suelo para usos agrarios, ganaderos o forestales, 10 mg/kg suelo para usos urbano y de juego infantil, y 100 mg/kg suelo para uso industrial.

Zona de estudio

La lucha antigranizo llevada a cabo en Aragón (España) fue el germen de la creación en 2016 de una plataforma social (¿Quién seca nuestros campos?) preocupada por las consecuencias medioambientales de la emisión de yoduro de plata. Dicha plataforma surge desde Used (Zaragoza), municipio de la cordillera ibérica junto a la laguna de Gallocanta (Fig. 1) que es considerada como el área generadora de las más importantes tormentas que azotan el valle del Ebro (Font, 1983; BOA, 2016).

La lucha antigranizo de Aragón se inició en esta zona en 1971, primero con “estufas” de carbón activado, pero ya desde 1973 con generadores terrestres emisores de yoduro de plata disuelto en acetona (BOA, 2016). Tras el informe meteorológico emitido a mediodía por Radio Zaragoza, las propias asociaciones de agricultores decidían sobre la puesta en marcha de los generadores que gestionaban.

Todo ello, evolucionó a que en 2001 surgiese el Consorcio Antigranizo de Aragón (Diario de Sesiones de las Cortes de Aragón, 2001) que aglutinó de manera voluntaria a las comarcas más afectadas diseñando una red inicial de 51 generadores terrestres (10x10 km; Fig. 1) cuyo encendido es decidido entre el 15 de abril y el 30 de septiembre (temporada de granizo) mediante el análisis diario del riesgo de tormentas con modelos basados en imágenes radar. A lo largo de este tiempo nuevas comarcas se han incorporado (Bajo Aragón-Caspe; 2007) y otras como Jiloca (2008) y Daroca (2017) decidieron salirse del consorcio.

Entre una situación y otra, el Gobierno de Aragón ha apoyado iniciativas como la siembra de nubes desde avionetas tal y como recoge el Diario Oficial de la Cortes (1985) para las campañas de 1984 y 1985.

Casualmente estos años coinciden con los inicios de la fábrica de automóviles de OPEL (1983) cercana a la ribera del Ebro (Fig. 1), donde los pueblos del entorno siempre han rumoreado sobre la posible lucha antigranizo para proteger los cientos de coches recién fabricados y que habitualmente están aparcados al aire libre.

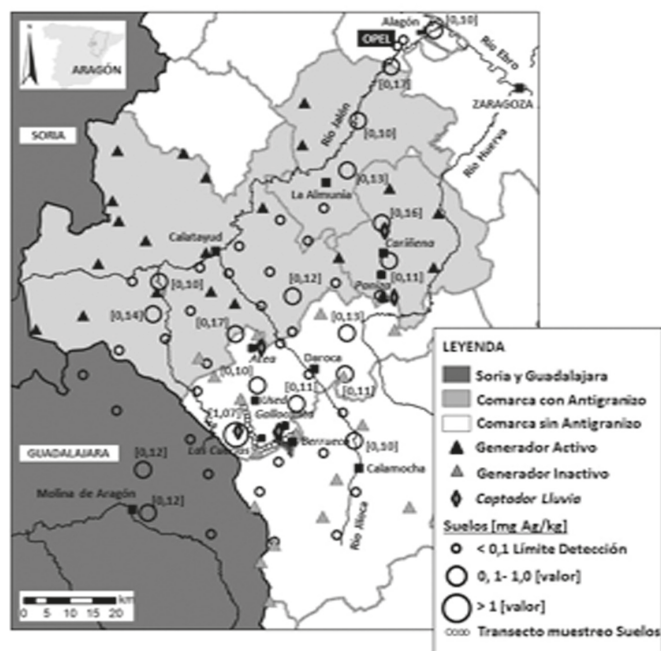


Figura1. Localización de generadores (activos/inactivos en 2017-2019), captadores de agua de lluvia y muestreo de suelos (general y transecto intergeneradores).

Según gestores de AVIMÓN (Asociación Ecologista Avionetas del Moncayo, comunicación personal) en provincias vecinas de Castilla (Guadalajara) donde inicialmente también se realizó lucha antigranizo, desde finales de los 70 no se han concedido nuevos permisos por parte de las Confederaciones Hidrográficas, organismos competentes para la autorización de instalaciones antigranizo.

Así pues, este estudio se centra en el entorno de la Laguna Gallocanta, si bien abarca una extensión que comprende las comarcas del Consorcio Antigranizo de Aragón, desde la ribera del Ebro hasta adentrarse en la provincia de Guadalajara (Fig. 1).

Ante la alarma social suscitada, el objetivo del estudio es hacer un diagnóstico aportando información contrastada sobre la posible influencia de la lucha antigranizo que se viene realizando en Aragón en el contenido de plata del medio ambiente, y en concreto, en esta primera parte del trabajo, sobre la deposición atmosférica y los suelos.

Metodología

Deposición atmosférica

Se instalaron cinco captadores de deposición atmosférica total que fueron muestreados durante dos años consecutivos entre abril de 2017 y marzo de 2019. Dos de ellos se localizaron en la comarca de Cariñena, incluida en el Consorcio Antigranizo de Aragón. Uno junto al generador de la Sierra del Águila en Paniza, y el otro en el término municipal de Cariñena, equidistante a diferentes generadores de la red antigranizo (Fig. 1). Los otros tres captadores se localizaron en la Comarca de Daroca que durante el periodo de muestreo ya no formó parte del Consorcio Antigranizo de Aragón. Se localizaron en la Laguna de Gallocanta, una parcela agrícola de Used y a las afueras del municipio de Atea, en la otra vertiente de la Sierra de Santa Cruz donde hipotéticas avionetas antigranizo hacían descargar las tormentas (Plataforma ¿Quién Seca nuestros Campos?, comunicación personal).

En campaña antigranizo (15 de abril – 30 de septiembre) los muestreos se realizaron con una periodicidad mensual (6 muestreos por campaña), mientras que durante el periodo en el que la red de generadores antigranizo no estuvo en funcionamiento la periodicidad fue menor (3 muestreos la primera campaña y uno en la segunda).

Las muestras recogidas en los captadores se filtraron obteniendo dos submuestras (líquido y sólido filtrado) que fueron analizadas por ICP-MS (Plasma Inductivamente Acoplado-Espectrometría de Masas). Las muestras sólidas previamente fueron digeridas con una mezcla de HF, HNO₃ y HClO₄ concentrados hasta sequedad y disolución del residuo con HNO₃ 6%. Fueron medidas con un

equipo Agilent 7500ce con la tecnología ORS (Sistema de Reacción Octopolar) que utiliza el modo de colisión con helio y cuyos procedimientos de medida se basan en el método U.S. EPA 200.8. (1994) para las muestras líquidas y U.S. EPA 6020B (2014) para las sólidas.

Las fechas de muestreo se clasificaron mediante un análisis multivariante Clúster (Statgraphics, 2010) en función de si fueron periodo antigranizo (codificado con 0 ó 1) y de la pluviometría y contenido en plata registrado en cada captador. Los datos fueron estandarizados, se utilizó como medida de similitud la distancia euclídea al cuadrado, y el método Ward como procedimiento para la obtención de asociaciones jerárquicas.

Suelos

Se diseñaron dos campañas de muestreos de suelos siempre con el criterio de tomar muestras superficiales en eriales abandonados al cultivo para evitar que un posible arado hubiese mezclado el suelo disminuyendo la concentración superficial en plata caída de la atmósfera. Aun así, para verificar que la plata detectada tuvo un origen antrópico por deposición atmosférica y que no sufrió un transporte importante en vertical tal y como apuntan otros autores (Tsiouris et al. 2003), junto al generador de Used aparte de la muestra superficial se tomó otra muestra más profunda.

Una primera campaña realizada en 2016 espació muestreos cada kilómetro (21 muestras) entre los generadores antigranizo de Used, Las Cuerlas y Berrueco que, distanciados unos 10 km, se disponen en forma de “L” atravesando la laguna de Gallocanta (Fig. 1). Un posterior muestreo más amplio (51 muestras, Fig. 1) realizado en junio de 2018 abarcó una red de puntos separados en torno a 20 km que se distribuyó desde la ribera del Ebro, donde se localiza la fábrica de OPEL, hasta adentrarse en tierras de Guadalajara, donde aparentemente no ha habido lucha antigranizo desde finales de los 70. Las analíticas se realizaron siguiendo la misma metodología de muestras sólidas utilizada para el residuo filtrado de la precipitación.

Resultados

Deposición atmosférica

El análisis multivariante clasificó los 16 muestreos realizados en dos grupos, con 10 y 6 muestreos respectivamente (Tabla 1, Fig. 2). El primer grupo presentó, para los cinco captadores, mayores pluviometrías y cantidades de plata recogida, aglutinando un 90% de los muestreos realizados en periodo de lucha antigranizo. El único muestreo fuera de este periodo incluido en el grupo tuvo alta pluviometría pudiendo estar afectado por las pruebas previas de instalación de la red de generadores, ya que fue el muestreo previo a la campaña antigranizo 2018.

Tabla 1. Análisis multivariante Clúster. Agrupación de las fechas de muestreo en función de su inclusión en periodo de lucha antigranizo (codificado con 0 ó 1), cantidad de plata y lluvia recogida en los captadores de Gallocanta, Used, Atea, Cariñena y Paniza.

Antigranizo*	Variable	Gallocanta	Used	Atea	Cariñena	Paniza
GRUPO 1 0,9	Ag ($\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{dia}$)	0,72	0,44	0,20	0,36	144,89
	Lluvia (mm/día)	1,56	1,89	2,19	1,59	1,68
GRUPO 2 0,5	Ag ($\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{dia}$)	0,19	0,06	0,09	0,30	31,55
	Lluvia (mm/día)	0,38	0,37	0,37	0,30	0,40

*0 = Muestreo en invierno (1 de octubre – 14 de abril)

1 = Muestreo en periodo antigranizo (15 de abril - 30 de septiembre)

El segundo grupo está compuesto por tres muestreos realizados en invierno y otros tres en periodo de lucha antigranizo, estos últimos con poca pluviometría, lo que condicionó bajas emisiones de plata y su menor deposición en los captadores. Además, si el análisis clúster discriminase subgrupos, en este segundo grupo llegaría a segregar los muestreos de periodos antigranizo de los de no antigranizo (Fig. 2).

Así pues, parece evidente que la plata recogida en los captadores está asociada a los periodos de lucha antigranizo en los que haya lluvias, principalmente, en forma de tormentas con riesgo de granizo, que es la situación que activa la emisión de yoduro de plata de la red de generadores.

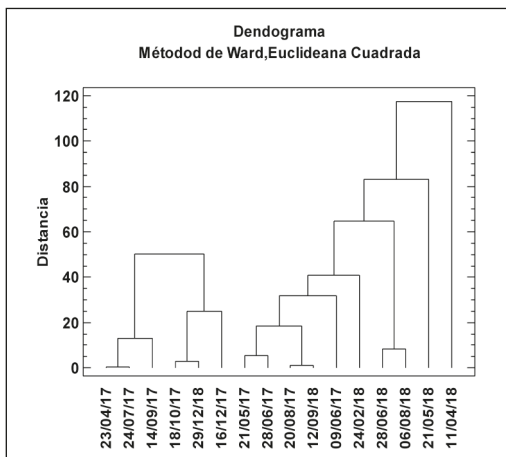


Figura 2. Dendrograma agrupando fechas de muestreo de los captadores de Gallocanta, Used, Atea, Cariñena y Paniza durante el periodo abril-2017/marzo-2019.

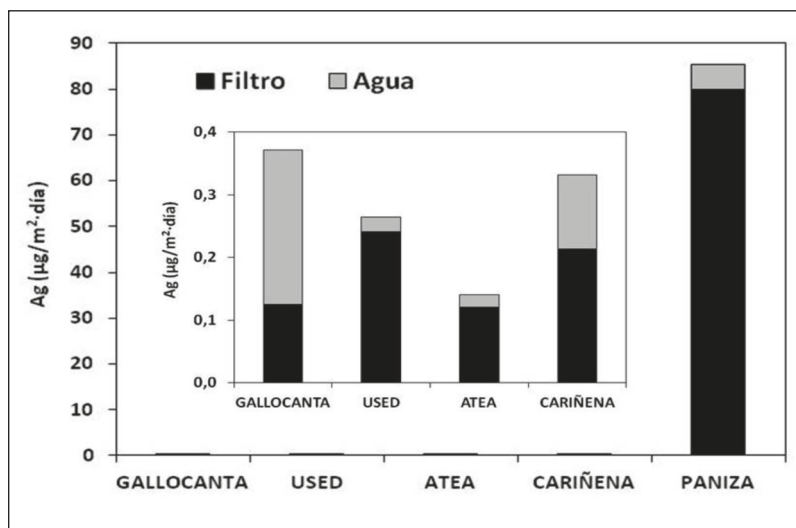
En cuanto a la variabilidad espacial, los resultados de los dos años de estudio (Fig. 3) muestran que la plata recogida por el captador de Paniza ($85 \mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{día}$) es muy superior a la del resto de captadores (entre $0,14$ y $0,37 \mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{día}$), y fundamentalmente se encontró en el sólido filtrado (94%), ya que en las cercanías del generador es donde debería depositarse más plata y en partículas insolubles de mayor tamaño.

El captador de Cariñena, equidistante entre generadores, registró mucha menos plata ($0,33 \mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{día}$) y menor porcentaje en el sólido filtrado (64%). Sorprende que los otros tres captadores (Gallocanta, Used y Atea), situados fuera de las comarcas con generadores activos, registraron niveles de plata del mismo orden de magnitud que Cariñena, e incluso Used y Atea con porcentajes de plata en sólido filtrado similares a los registrados en Paniza. El captador de Gallocanta llegó a registrar más plata que el de Cariñena con un porcentaje en el sólido filtrado menor (Fig. 3).

Los datos muestran que una vez alejados del punto de emisión las cantidades de plata registradas son muy inferiores, pero también que la plata emitida puede transportarse muchos kilómetros incluso a sotavento tal como también constataron Freeman (1979), DeFelice et al. (2014) y Jing et al. (2016).

Aun así, según Pey et al. (Datos en fase de publicación) la deposición atmosférica registrada en áreas remotas, como puede ser el Parque Nacional de Ordesa y Monte Perdido (Pirineos), son hasta un orden de magnitud inferiores ($0,03 \mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{día}$) a los obtenidos en el área cubierta por los generadores antigranizo.

Figura 3. Masa de plata en agua y filtros de los captadores de Gallocanta, Used, Atea, Cariñena y Paniza durante el periodo abril-2017/marzo-2019.



El alto porcentaje de plata como deposición insoluble de Used y Atea podría sugerir una fuente adicional a la red de generadores del Consorcio Antigranizo. Curiosamente existe una relación inversa entre la pluviometría de Gallocanta, Used y Atea con la plata recogida por sus captadores (Ec. 1) lo que invita a realizar estudios, que ya se están llevando a cabo por los autores de este trabajo, a cerca de la influencia de emisiones de plata sobre la pluviometría.

$$\text{Plata } (\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{día}) = -0,83 \times \text{Lluvia (mm/día)} + 1,22$$

$$R^2=0,9998; P<0,05 \text{ [Ec. 1]}$$

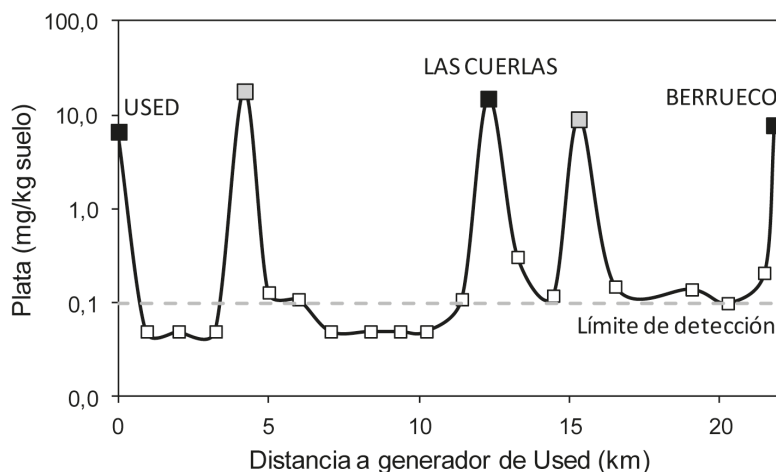
Suelos

El muestreo de suelos a lo largo del transecto entre los generadores de Used-Las Cuerlas-Berrueco (Fig. 1 y 4) mostró que los niveles más altos en plata (en torno a 10 mg/kg suelo) se presentaron en las inmediaciones de los tres generadores. En las muestras contiguas, a un kilómetro de distancia de ellos, ya descienden considerablemente, llegando a valores incluso por debajo del límite de detección del método analítico (0,1 mg/kg suelo).

La muestra tomada a mayor profundidad junto al generador de Used presentó 0,34 mg/kg suelo frente a los 6,67 mg/kg suelo de la muestra superficial, lo que indicaría la procedencia de la plata por deposición atmosférica y su limitada movilidad vertical.

Sorprende que frente a los niveles cercanos al límite de detección de las muestras entre generadores, hubo dos muestras con valores del mismo orden o incluso superior a los encontrados en los generadores. El análisis de 5 muestras adicionales en el entorno de la quinta muestra entre Used y Las Cuerlas (18 mg/kg suelo) dio como resultado promedio 0,16 mg/kg suelo con una desviación típica de 0,07 mg/kg suelo. Así pues,

Figura 4. Plata en suelo según transecto entre los generadores de Used-Cuerlas-Berrueco.



parece que la variabilidad espacial en el entorno de una muestra no es demasiado grande y los dos valores anómalos pueden deberse a contaminaciones locales muy puntuales, ya que al menos la muestra entre Used y Las Cuerlas se encuentra cercana a un antiguo vertedero.

En cuanto al muestreo general de las 51 muestras analizadas, tan sólo 18 (35% de las muestras) presentaron valores por encima del límite de detección (0,1 mg/kg suelo). El valor máximo (1,07 mg/kg suelo) se obtuvo en una muestra cercana a un antiguo generador que funcionó en Used hasta la instauración del consorcio antigranizo. Al margen de esa muestra, el resto no superaron los 0,17 mg/kg suelo.

Si se analizan los datos por comarcas (Tabla 2), se observa que comarcas como Daroca, incluida en el Consorcio Antigranizo hasta 2017 (el muestreo se realizó en 2018), y Cariñena tienen el mayor porcentaje de muestras por encima del límite de detección (ambas 67%) y los mayores valores medios de contenido de plata en suelos (0,20 y 0,11 mg/kg suelo).

Sin embargo, otras comarcas como la del Jiloca (fuera del consorcio desde 2008) y Guadalajara (sin uso de generadores desde finales de los años 80) tienen los menores porcentajes (13% y 29% respectivamente) de muestras que superan el límite de detección, así como los valores medios de contenido de plata en suelo (0,06 y 0,07 mg/kg suelo) más bajos.

Tabla 2. Numero de muestras de suelo, porcentaje por encima del límite de detección (LD) y contenido medio de plata en las siete comarcas muestreadas.

Comarca	Nº de Muestras	Ag > LD ¹	Ag Media ²
		%	mg/kg suelo
Castilla	7	29	0,07
Jiloca	8	13	0,06
Daroca	9	67	0,20 (0,10) ³
Cariñena	3	67	0,11
Calatayud	16	19	0,07
Valdejalón	5	60	0,10
Ribera Alta del Ebro	3	33	0,07

¹ LD: Límite de Detección Ag = 0,1 mg/kg suelo.

² Para aquellas muestras < LD fue considerado un valor de plata de 0,05 mg/kg suelo.

³ Valor medio sin la muestra localizada en las cercanías de antiguo generador.

Se puede destacar que la comarca de Calatayud (dentro del Consorcio Antigranizo de Aragón) tan sólo registró un 19% de muestras por encima del límite de detección, y que la Ribera Alta del Ebro (fuera de la red de generadores del Consorcio pero con la fábrica de OPEL en su territorio), presentó uno de los menores contenido de plata en sus suelos (0,07 mg/kg suelo), si bien, solo se cogieron 3 muestras.

A excepción de la muestra localizada junto al antiguo generador de Used (1,07 mg/kg suelo) el resto están claramente por debajo de 1 mg/kg suelo, que como ya se ha mencionado, es el nivel de referencia legal propuesto por el Gobierno de Aragón (BOA, 2008) para los usos del suelo más restrictivos: agrícola, ganadero y forestal. No obstante, hay que tener en cuenta que ese valor de referencia esta obtenido a partir del análisis de 403 muestras (IGME, 2008) y en el que el contenido medio en plata para las comarcas estudiadas en este trabajo fue de 0,71 mg/kg suelo mientras que para el resto de Aragón fue de 0,48 mg/kg suelo.

Más que un posible descenso del contenido en plata en los suelos desde 2008, los valores de un orden de magnitud inferiores obtenidos en este trabajo podrían estar justificados por las diferentes técnicas analíticas utilizadas. En IGME (2008) se analizaron por Espectrometría de Emisión Plasma con Acoplamiento Inductivo (ICP-AES) cuyo límite de detección fue cinco veces superior al de las técnicas empleadas en el presente estudio (0,5 mg/kg suelo frente al 0,1 mg/kg suelo). Para verificar los resultados obtenidos, 5 muestras fueron enviadas a un tercer laboratorio (Actlabs, Canadá) para ser analizadas por ICP-MS con límite de detección de tan sólo 0,002 mg/kg suelo. Cuatro de las muestras que habían dado por debajo del límite de detección volvieron a dar menos de 0,1 mg/kg suelo y la que dio por encima (0,16 mg/kg suelo) replicó el resultado.

En base a ello, sería recomendable que la legislación sobre niveles de referencia de contenido de plata en suelos no sólo indicase los valores para cada uso sino también las condiciones de muestreo y las técnicas analíticas a utilizar. Aun así, tanto en IGME (2008) como en este trabajo se han detectado niveles de plata superiores en los suelos de las comarcas asociadas a la lucha antigranizo mediante emisores terrestres de yoduro de plata.

Discusión y conclusiones

Para este trabajo no se ha podido obtener información de la cantidad de plata emitida por el Consorcio Antigranizo de Aragón. No obstante, BOA (2010) informa de que en la campaña 2009 fue necesario el encendido 67 días, durante un total de 316 horas lo que supuso 4,7 horas de encendido por día de tormenta.

Dessens et al. (2016) colaboran en el diseño y asesoramiento sobre el encendido de los generadores del Consorcio Antigranizo de Aragón. Desde el análisis de diversos casos de estudio, en la anterior publicación aconsejan para una red de 10x10 Km como la de Aragón una emisión durante las tres horas previas a la tormenta de granizo a una

tasa de 9 g de AgI/hora. Asumiendo dicha tasa de emisión, para un año como 2009 se habría emitido 1,3 kg de plata por cada generador lo que supone $1,3 \text{ mg/m}^2$ en los 100 km^2 que abarca cada generador.

Las cantidades registradas por los captadores de deposición atmosférica durante los dos años de estudio (2017-2018) contabilizaron una cantidad de plata que osciló entre los $30 \text{ mg/m}^2 \cdot \text{año}$ en el mismo generador de Paniza y tan sólo $0,05\text{-}0,13 \text{ mg/m}^2 \cdot \text{año}$ del resto de captadores. Asumiendo que las tasas registradas en Paniza solo se dan en los metros más cercanos al generador, la falta de plata en el resto de los captadores podría justificarse por la amplia dispersión a cientos de kilómetros, tal y como apuntan otros estudios (Freeman, 1979; Tsiouris et al., 2003).

Para un promedio de deposición de $0,10 \text{ mg/m}^2 \cdot \text{año}$ durante los últimos 50 años en los 3 primeros cm de un suelo de densidad aparente $1,4 \text{ g/cm}^3$ la concentración de plata en ese suelo sería de $0,12 \text{ mg/kg}$ suelo, que es del mismo orden de magnitud que las concentraciones encontradas en los suelos del área de estudio.

Si la tasa de emisión llegase a ser en los últimos 50 años como la estimada en 2009 ($1,3 \text{ mg/m}^2 \cdot \text{año}$) y se depositase íntegramente en la zona de emisión, los suelos tendrían una concentración de plata del orden de $1,5 \text{ mg/kg}$ suelo, siempre y cuando permaneciese en sus tres primeros centímetros, lo que sugiere la investigación de su posible transporte y acumulación.

Tsiouris et al. (2002) encontraron concentraciones de plata en suelos griegos similares a los registrados en este trabajo sin diferencias significativas entre zonas con y sin lucha antigranizo, si bien, allí la lucha antigranizo se llevaba realizando solo doce años.

Es evidente que la plata captada en las muestras atmosféricas y en los suelos está originada antrópicamente por la lucha antigranizo con yoduro de plata afectando más a las comarcas que la practican, pero también a extensas áreas fuera de ellas.

Las cantidades de plata tanto en precipitación como en suelos son importantes en las cercanías a los puntos de emisión, para lo cual será interesante realizar un estudio más de detalle con el objetivo de evaluar su alcance espacial, que a priori, no irá más allá de unos pocos metros. Una vez alejados de los generadores la plata por deposición atmosférica disminuye significativamente y es incorporada al suelo hasta niveles por debajo de los permitidos por la legislación para las actividades más restrictivas.

Otra cuestión es la movilidad que la plata pueda tener con posterioridad a su incorporación al suelo por el transporte en aguas-sedimentos, su concentración en diferentes lugares o su posible incorporación a la biota, aspectos que serán tratados en la segunda parte de este trabajo.

Agradecimientos

Este estudio ha sido posible gracias a la financiación de los proyectos AgroSOS (PID2019-108057RB-I00) y DONAIRE (CGL2015-68993-R) ambos del Ministerio de Ciencia e Innovación - Fondos Feder UE, así como al contrato predoctoral concedido por el Gobierno de Aragón a J.M. Orellana-Macías (BOA 20/07/2017). Un especial agradecimiento a Iciar Vázquez y Cristina Pérez por su colaboración.

Bibliografía

- Abshaev G.K., Sulakvelidze I.I., Burtsev L.M., Fedchenko M.K., Jekamukhov A.M., Abshaev B.K., Kuznetsov A.M., Malkarova A.D., Tebuev P.A., Nesmeyanov I.I., Shakirov I.N., Shevela G.F. 2006. Development of rocket and artillery technology for hail suppression. En: Achievements in weather modification. Department of Atmospheric studies, Abu Dhabi, pp 109–127
- ATSDR. 1990. Toxicological profile for silver. Atlanta, GA, US Department of Health and Human Services, Public Health Service, Agency for Toxic Substances and Disease Registry (TP-90-24).
- Burgaz F. 2009. Management of Agricultural Weather Risks: traditional procedures and new management strategies. Geophysical Research Abstracts. EGU General Assembly 2009. <http://meetings.copernicus.org/egu2009>, p.13620.
- Boletín Oficial de Aragón. 2008. ORDEN de 5 de mayo de 2008, del Departamento de Medio Ambiente, por la que se procede al establecimiento de los niveles genéricos de referencia para la protección de la salud humana de metales pesados y otros elementos traza en suelos de la Comunidad Autónoma de Aragón. 75:9331-9332.
- Boletín Oficial de Aragón. 2010. Respuesta escrita a la Pregunta núm. 925/10, relativa a las instituciones integrantes del Consorcio para la lucha antigranizo de Aragón. 237:15456-15457
- Boletín Oficial de Aragón. 2016. Proposición no de Ley núm. 423/16, sobre el uso de los sistemas antigranizo, para su tramitación ante la Comisión de Desarrollo Rural y Sostenibilidad. 120: 9298-9299.
- De U.S., Dube R.K., Prakasa Rao G.S. 2005. Extreme weather events over India in the last 100 years. Journal of Indian Geophysical Union, 9, 3, 173-187.
- DeFelice T., Golden J., Griffith D., Woodley W., Rosenfel D., Breed D., Solak M., Boe B. 2014. Extra area effects of cloud seeding. An updated assessment. Atmospheric Research, 135–136, 193–203. doi.org/10.1016/j.atmosres.2013.08.014
- Diario de Sesiones de las Cortes de Aragón. 1985. Diputación Permanente: Serie B (Legislatura I). Número 3 - 12 de septiembre de 1985.
- Diario de Sesiones de las Cortes de Aragón 2001. Comisión Agraria: Serie B (V Legislatura). Número 127 - 11 de diciembre de 2001.
- Dessens J. 1995. Severe convective weather in the context of a night-time global warming. Geophysical Researchs Letters, 22, 1241-1244.
- Dessens J. 1998. A physical evaluation of a hail suppression project with silver iodide ground burners in southwestern France. Journal of Applied Meteorology 37:1588–1599

- Dessens J., Sánchez J.L., Berthet C., Hermida L., Merino A. 2016. Hail prevention by ground-Based silver iodide generators: Results of historical and modern field projects. *Atmospheric Research* 170: 98-111.
- Esteban A. 1975. Lucha antigranizo. Hoja divulgativa del Ministerio de Agricultura.11-12(75). 20 pp. ISBN: 84-341-0389-3.
- Font I. 1983. Atlas Climático de España, INM y Ministerio de Transportes, Turismo y Comunicaciones, Madrid.
- Font I. 2000. Climatología de España y Portugal. Salamanca: Ediciones Universidad de Salamanca.
- Fowler B., Nordberg G. 1986. Silver. In: Friberg L, Nordberg G, Vouk V, eds. Handbook on the toxicology of metals. Volume II. Specific metals. New York, NY, Elsevier, pp. 521–530.
- Freeman R. 1979. Ecological kinetics of silver in an alpine lake ecosystem. In: Marking L, Kimerle R, eds. Aquatic toxicology. Proceedings of the 2nd annual symposium on aquatic toxicology. Philadelphia, PA, American Society for Testing and Materials, pp. 342–358 (ASTM Special Technical Publication 667).
- García-Ortega E., Hermida L., Hierro R., Merino A., Gascón E., Fernández-González S., Sanchez J., López L. 2014. Anomalies, trends and variability in atmospheric fields related to hailstorms in north-eastern Spain. *International Journal of Climatology*. 34. 34(11): 3251-3263. <https://doi.org/10.1002/joc.3910>.
- Henderson T.J. 2006. Achievement in weather modification. Department of Atmospheric studies, Abu Dhabi, pp 8–21
- Instituto Geológico y Minero de España. 2008. Determinación de niveles de fondo y niveles genéricos de referencia para metales en suelos de la Comunidad Autónoma de Aragón. 124 pp.
- Jing, X., Geerts, B., Boe, B. 2016. The Extra-Area Effect of Orographic Cloud Seeding: Observational Evidence of Precipitation Enhancement Downwind of the Target Mountain. *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 55(6), 1409–1424. <https://doi.org/10.1175/JAMC-D-15-0188.1>
- Krauss T.W, Santos J.R. 2003. The effect of hail suppression operations on precipitation in Alberta, Canada. En: Proceedings of the Eighth WMO scientific conference on weather modification, Casablanca, 7–12 Apr 2003, pp 279–282
- Levin Z. 2011. Lessons learned from 50 years of cloud seeding in Israel. En: Proceedings of tenth weather modification conference, Bali, 3–7th Oct 2011, pp P1–P4
- López L., Marcos, J.L., Sánchez A., Castro R. Fraile. R. 2001: CAPE values and hailstorms on northwestern Spain. *Atmos. Res.*, 56, 147–160.
- Mather, G.K., Steffens, F.E., Fletcher, L. 1997. Results of the South- African cloud-seeding experiments using hygroscopic flares. *Journal of Applied Meteorology* 36:1433–1447
- Pascual R. 2002: Estudio de las granizadas en el llano de Lérida. Nota técnica no. 3, Centro Meteorológico Territorial de Cataluña.
- Pérez R.C. 2007. Dinámica atmosférica y los procesos tormentosos severos, Universidad Tecnológica Nacional - Facultad Regional Mendoza. 137 pp.

- Smith I., Carson B. 1977. Trace metals in the environment. Volume 2. Silver. Ann Arbor, MI, Ann Arbor Science Publishers, 469 pp.
- Statgraphics Centurion XVI. 2010. Manual de Usuario. StatPoint Technologies, Inc. 297 pp.
- Tsiouris, S.E., Aravanopoulos F.A., Papadoyannis I.N., Sofoniou M.K., Polyzopoulos N., Christodolou M., Samanidou, V.F., Zachariadis G.A., Constantinidou H.I.A. 2002. Soil silver content of agricultural areas subjected to cloud seeding with silver iodide. *Fresenius Environmental Bulletin*, 11(9B), 697–702.
- Tsiouris S.E., Aravanopoulos F.A., Papadoyannis I.N., Sofoniou M.K., Samanidou V.F., Zachariadis G.A., Constantinidou H.I.A. 2003. Soil Silver Mobility in Areas Subjected to Cloud Seeding with AgI. *Fresenius Environmental Bulletin*, 12(9), 1059–1063.
- U.S. EPA. 1994. “Method 200.8: Determination of Trace Elements in Waters and Wastes by Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry,” Revision 5.4. Cincinnati, OH
- U.S. EPA. 2014. “Method 6020B (SW-846): Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry,” Revision 2. Washington, DC.
- Vujovi D., Proti, M. 2017. The behavior of the radar parameters of cumulonimbus clouds during cloud seeding with AgI. *Atmospheric Research*, 189, 33–46. <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2017.01.014>.