

1258-1260, anys sense estiu a Andorra: possibles efectes econòmics i polítics durant el període dels Pariatges

Alan Ward i Koeck

Professor i doctor en Societat de la Informació



P
Papers
de recerca
històrica
10

Resum

1258-1260, anys sense estiu a Andorra: possibles efectes econòmics i polítics durant el període dels Pariatges

El període històric que envolta l'acord entre els Coprínceps ha estat estudiat des de molts punts de vista. Al nostre coneixement, però, no s'han tingut en compte factors purament físics relacionats amb el clima que aporten nova informació sobre aspectes que podrien haver participat en la creació de la situació de conflicte polític. En aquest treball, es proposa una pauta d'explicació relacionada amb el trastorn atmosfèric d'origen volcànic que va estendre els seus efectes des del Pacífic fins a les nostres contrades.

Resumen

1250-1260, años sin verano en Andorra: posibles efectos económicos y políticos durante el período de los Pariajes

El período histórico entorno al acuerdo entre los Copríncipes ha estado estudiado desde bastantes puntos de visto. A nuestro conocimiento, pero, no se han tenido en cuenta factores puramente físicos relacionados con el clima que aportan nueva información sobre aspectos que podrían haber participado en la creación de la situación de conflicto político. En este trabajo, se propone una pauta explicativa relacionada con el trastorno atmosférico de origen volcánico que extendió sus efectos des del Pacífico hasta nuestra región.

Résumé

1250-1260, des années sans été en Andorre: les possibles effets économiques et politiques pendant la période des Paréages

La période historique autour de l'accord entre les Coprinces a été étudiée de maints points de vue. Mais, à notre connaissance, certains facteurs purement physiques en relation avec le climat n'ont pas été pris en compte, qui ajoutent des nouvelles informations sur des aspects qui pourraient avoir eu une influence sur la création de la situation de conflit politique. Dans ce travail, une ligne explicative est proposée autour de la perturbation climatique qui eut ses effets depuis l'Océan Pacifique jusqu'à nos contrées.

Abstract

1250-1260, years without summer in Andorra: their possible economic and political effects during the period of the Pariatges

The historical period around the agreement between Coprinces has been studied from many points of view. However, to our knowledge certain purely physical factors linked to climate have not been taken into account, that give new understanding on aspects that could have had an effect on the creation of a political conflict. In this work, an explication guideline is proposed based on a climate disruption that had its effects from the Pacific Ocean up to our region.



s conegut el llarg conflicte entre els senyors de l'Alt Urgell i els Comtes de Foix que va abastar tot el període entre finals del segle XII i finals del XIII. Episodis com el de l'any 1195 han permès a Carme Batlle parlar del “terrible pillatge de la ciutat” de la Seu d'Urgell (Batlle, 2016, p. 19), o a Carles Gascón comentar la “invasió del bisbat d'Urgell a la fi del segle XII” (Gascón, 2015). El període conclou amb l'acte fundacional d'Andorra, la signatura del doble Pariatge dels anys 1278 i 1288, el punt de partida d'un període relativament pacífic del nostre país, si més no dins de l'entorn polític de l'Europa de finals de l'edat mitjana i l'edat moderna. Ara bé, fins ara els historiadors han estudiat poc el context climàtic precís i les manifestacions naturals que els habitants van patir al llarg del conflicte. Els efectes de les modificacions climàtiques han estat —i són encara— especialment marcats, tant a nivell de mar (alteracions del nivell de l'aigua) com a la mitjana i alta muntanya, com seria el cas d'Andorra. Aquest article vol reconstruir els efectes que l'any 1257 va tenir l'erupció del volcà Samalas (illa de Lombok, actual Estat d'Indonèsia) sobre l'agricultura i la ramaderia de les Valls, i relacionar aquest fet amb el període polític del moment. Per fer-ho, començarem recordant les principals característiques del sistema agrícola autosuficient de les Valls, presentarem l'erupció del volcà l'any 1257 i els seus efectes a escala global, i finalment estudiarem les seves probables conseqüències a escala local en el nostre país i entorn immediat.

L'autosuficiència alimentària de les Valls

Malgrat l'absència de testimonis directes de l'economia de producció d'aliments a les Valls durant la baixa edat mitjana, disposem d'alguns indicis importants que la

permeten descriure a grans trets: les dades que ens provenen de la comparació amb la situació dels Països Catalans, amb els quals Andorra compartia població, sistema polític i llengua. Per aquests motius es pot suposar que els seus costums agrícoles no distaven excessivament, tot salvant les lògiques diferències causades per l'altitud i la climatologia de muntanya. D'altra banda, no podem obviar els testimonis escrits, documents que recollien tant les relacions entre privats com entre senyors, i en què apareixen sovint els elements de producció agrícola: terrenys, camps, horts, fonts, pous, molins i altres. A partir d'aquestes informacions podem teoritzar la presència d'una economia de subsistència basada en dos grans estrats geogràfics horitzontals.

En primer lloc hi havia la producció d'aliments per la subsistència de la població. Entre els cultius, no hi ha dubte que els principals destinats al consum humà devien ser els cereals, principalment blat, ordi i civada. Aquests cultius es devien fer sobretot a prop del fons de les valls, allà on el terreny era més accessible i les temperatures més adequades per aquestes espècies: "Probablement, fins a finals del segle XIII les terres de cultiu són al fons de les valls, prop dels rius, que és on es troben les terres de més qualitat." (Bascompte, 2005). Entre altres usos de la terra dins aquest mateix estrat, la viticultura va experimentar un creixement important del nombre d'aparicions en els documents al llarg dels segles, i notablement del segle XIII (Ward, A., 2017).

Per damunt, en un segon estrat, els boscos i els terrenys de pastura es trobaven a altituds massa elevades per permetre fàcilment el cultiu de cereals, motiu pel qual s'havien de destinar a les activitats pecuàries i forestals. A la part superior d'aquest estrat, els prats alpins tan sols podien permetre l'activitat ramadera, associada possiblement a la mineria.

En les fonts documentals, a partir del segle XVII sovintegen les referències al treball diplomàtic curós que duïen a terme les autoritats andorranes per tal d'assegurar poder importar aliments de base des d'altres territoris, sovint Catalunya. Així, l'any 1606, la Reial Audiència de Barcelona confirma el dret dels andorrans a importar queviures al seu propi consum, concretament blat i vi (Bascompte, 1997, p. 87). En el seu moment, Lúdia Armengol va recollir una sèrie de referències

d'arxiu que daten dels anys 1628, 1630, 1648, 1651 i 1690 (Armengol, 1985, p. 57 i ss.), i a través de les quals tenim constància de l'esforç diplomàtic amb els països veïns. Aquestes dates concorden amb un període de baixada pronunciada de les temperatures a tot Europa. A partir de finals del segle XIV, el període conegut com la "petita edat de gel" va durar fins ben entrat el segle XVII. Sembla que a Andorra no només hi va haver una disminució de les temperatures d'un o dos graus centígrads, sinó també un augment de la pluviometria. Com a conseqüència, es va reduir l'espai disponible pel creixement dels cereals, que s'havien de reservar a les cotes més baixes. Paral·lelament podem pensar en un augment de l'activitat pastoral, que hauria resultat necessària per poder sostenir l'economia del país. En definitiva, ja a partir d'aquesta època, en què es passava de l'Edat Mitjana al Renaixement, Andorra no devia ser autosuficient pel que fa a la seva alimentació de la manera en què ho havia estat durant la major part de la baixa edat mitjana.

El volcà Samalas i els seus efectes a escala mundial

Al llarg de tot l'entorn de l'Oceà Pacífic es troba un anell de volcans associats a fronteres actives entre plaques tectòniques. Un d'ells, Samalas (latitud: 8° 24' 36" S, i longitud: 116° 24' 30" E), es situa a l'illa de Lombok, entre les illes més grans de Bali i Sumbawa, a l'Estat d'Indonèsia. Aquest volcà ha tingut un historial eruptiu llarg i complex, amb múltiples esdeveniments, cosa que es veu amb la forma complexa del seu cràter, que comprèn diversos cràters sobreposats parcialment (Figura 1).

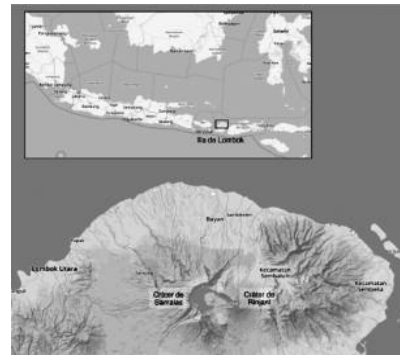


Figura 1: Situació de l'illa de Lombok a la mar de Java, i els seus dos volcans principals: el Samalas i el Rinjani. Font: OpenStreetView (adaptat)

No ha de resultar estrany pensar que un volcà situat a la zona equatorial del Pacífic pugui afectar a tot el planeta. Altres exemples inclouen l'erupció del volcà Tambora el 1815, a l'illa Sumbawa, Indonèsia (Stothers, 1984); la del volcà Kuwae, a les illes Vanuatu (Gao, 2005), el 1452-53; o l'erupció encara hipotètica d'un volcà desconegut a principis dels anys 1460 (Bauch, 2015). En tots els casos, les erupcions van produir importants emissions de gasos —sobretot diòxid de sofre, SO₂— i cendres que, quan s'injecten amb força dins de les capes altes de l'atmosfera, poden fer el seu camí al voltant de la Terra en forma d'aerosol. Si el volcà es troba a la zona tropical, aquests núvols, inicialment presents tan sols en una estreta franja entre els tròpics, de seguida s'escampen pel nord i el sud i afecten les zones subtropicals.

Els seus efectes consisteixen sobretot a augmentar l'albedo o reflectivitat de l'atmosfera. Per aquesta raó, la quantitat d'energia solar que arriba a la terra és menor, i les temperatures minven a la superfície. Si es produeix a l'hivern, les temperatures hivernals seran inferiors a les habituals i, si es produeix durant la primavera o l'estiu, sovint les temperatures diürnes no arribaran fins al nivell necessari perquè les plantes i els cultius acabin de madurar. En aquests casos es parla del fenomen “d'anys sense estiu”. Addicionalment, el diòxid de sofre (SO₂) es combina amb vapor d'aigua, present en els núvols, per formar ions sulfat (SO₄²⁺) i àcid sulfúric. Aquesta pluja àcida encara augmenta més l'efecte nociu de l'aerosol sobre la vegetació. Tot i això, les relacions entre les emissions de diòxid de sofre i els altres components de l'atmosfera són complexes. Així, si bé en general les emissions volcàniques importants d'aquest gas solen correspondre —segons les fonts històriques— a períodes d'un o fins a tres anys de temperatures relativament baixes, en algunes ocasions pot succeir que diverses erupcions repetides regularment al llarg d'una dècada tinguin un efecte invers i acabin causant una pujada de les temperatures globals (Ward, P.L., 2009). Això és el que sembla que va passar després de l'erupció del volcà Eldgjá, Islàndia, l'any 934, que hauria afectat la Xina de la dinastia Tang: durant els anys entre l'erupció i el 938, el temps va ser més calorós que de costum, però posteriorment, i fins l'any 943, es va passar a un règim

força fred i amb àmplies caigudes de neu, fets que s'atribueixen tots dos als efectes de l'erupció del volcà islandès (Fei i Zhou, 2006).

El cas del volcà Samalas i la seva erupció de l'any 1257 resulta paradigmàtic, si més no pel que fa a la pèrdua de temperatura. Basant-se en l'anàlisi de mostres de gel polar, Lavigne parla de “*a colossal volcanic eruption [...] the largest sulphur release to the stratosphere of the past 7000 years*” (Lavigne *et al.*, 2013). Els seus resultats encara es veuen a dia d'avui pel cràter que va deixar darrere seu a l'illa de Lombok, amb dipòsits de —pel cap baix— 40 quilòmetres cúbics de tephra i fluxos piroclàstics que van arribar a uns 25 quilòmetres del pic. Pel que fa als seus efectes sobre el clima, aquests autors relacionen l'aerosol de SO₂ emès amb l'estiu particularment poc calorós de l'any 1257 i, en contrast, l'hivern bastant suau de l'any 1257-8, tots dos fenòmens observats a Europa en general i a Anglaterra en particular. Amb aquest quadre general, no hi ha motius per descartar que l'activitat del Samalas hagués pogut afectar les Valls de la mateixa manera que ho va fer a la resta del continent.

La petjada de l'erupció a Andorra

Un treball d'investigació recent ha extret i analitzat llocs del fons del llac de Montmalús (Galofré, 2019). Els sediments lacustres són una font d'informació interessant sobre els paleoclimes, ja que hi solen drenar terres i vegetals de la conca que els envolta. Hi queden capturades i se'n poden determinar les seqüències amb relativa facilitat. Els llacs d'alta muntanya, a més, presenten l'avantatge de ser relativament estàtics dins l'espai, amb vores ben determinades, a més que la seva velocitat de deposició de sediments és relativament més baixa que en zones on els cursos d'aigua fan aportacions més ràpides. D'aquesta manera, una columna relativament curta pot contenir dades sobre un període històric de més amplitud. En el cas del treball referenciat, es poden notar *inter alia* dos resultats concrets que, al nostre entendre, són d'especial interès. El primer nivell, que mitjançant el mètode del carboni (¹⁴C) data cap a l'any 1300, és d'un pic important de la quantitat total de sofre present. L'altre, que data del segle següent, mostra una davallada de la quantitat total

de carboni dins els sediments, associada amb una disminució de la proporció de l'isòtop radioactiu (^{13}C) i també amb un pic de la quantitat de plom.

Aquests resultats es poden analitzar de dos maneres. En primer lloc, el sofre present en les mostres no pot ser d'origen local ja que no existeixen dipòsits superficials de minerals associats amb aquest element a la regió. Així, hem de pensar que el seu origen ha de ser aliè, cosa que fa intervenir el transport aeri de sofre d'origen volcànic i en forma d'aerosols. Ara bé, no es coneixen grans erupcions volcàniques al voltant de l'any 1300; les més properes van ser, justament, l'erupció del Samalas l'any 1257 i una erupció comparable del volcà Quilotoa als Andes (actualment Estat d'Equador) l'any 1280. Així, hem de pensar en la necessitat d'ajustar la datació per carboni 14 dels resultats, que els autors semblen haver basat en tan sols tres mostres. Tractant-se d'una seqüència relativament complexa i que, segons diuen, presenta a "*reservoir effect [that] does not seem to be constant along the sequence*" (Galofré, 2019, p. 10), s'intueix que aquest fet hagi pogut causar una desviació d'una cinquantena d'anys en la datació. Per aquest motiu, la nostra interpretació de les dades és que el pic de sofre que es presenta a 49 cm de profunditat en la columna de sediments correspon a sofre volcànic de l'erupció del 1257 del Samalas, i va ser dipositat als voltants del llac de Montmalús entre aquest any i alguns anys posteriors. Sens dubte, una quantitat del material hauria estat empronat entre els sediments de la conca del llac, entrant dins el sistema lacustre i dipositant-se en el fons tan sols uns quants anys més tard. En segon lloc, la posterior disminució de carboni en els sediments és un fenomen que es pot qualificar de llarg —sembla haver durat una cinquantena d'anys pel cap baix— i bastant abrupte. L'origen d'aquest carboni tant podria ser de la vegetació dels voltants del llac com de la producció lacustre a través d'espècies aquàtiques com les algues. En tot cas, aquesta disminució indica un descens de les temperatures, cosa que afectaria no només la productivitat dels vegetals durant el seu període de creixement, sinó també la llargada d'aquest període. A partir del moment en què el llac es cobreix de gel, o els seus voltants de neu, la productivitat vegetal decreix fortament. Així, existeix una

correlació entre un allargament de l'hivern i la reducció de la captació de carboni aeri per part dels vegetals.

Ens trobem doncs davant d'un índex material d'una possible baixada prolongada de les temperatures a Andorra, que es produeix just després de l'aparició d'un pic de sofre. Si admetem l'ajustament que proposa la datació, ens trobem amb un pic de sofre cap a l'any 1257 i següents, així com una baixada significativa de les temperatures durant mig segle —possiblement el període del 1260 al 1310 aproximadament.

Conclusions

Típicament, els aerosols d'origen volcànic en temps històrics han provocat la successió de diversos hiverns més durs que de costum. La conseqüència és una reducció de la producció vegetal, tant per al consum humà com per a les pastures del bestiar. Aquesta reducció repetida, diversos anys, en combinació amb hiverns més durs i un escurçament de la temporada de creixement —primaveres més tardanes i tardors més primerenques—, podia disminuir els recursos disponibles i àdhuc arribar a provocar situacions de fam, sobretot en el context de societats agrícoles (Gräslung i Price, 2012). En resulten una mortalitat humana i dels ramats, que poden derivar en conseqüències econòmiques i àdhuc polítiques. Davant de l'escassetat de mitjans propis, algunes entitats han estat temptades d'anar a buscar recursos als territoris dels veïns. Un exemple que pertany a un període anterior és la possible explicació proposada per alguns autors de la invasió l'any 823 del regne de Carles el Calb per part de les tropes de Lluís l'Alemany, en el context d'una successió d'anys amb una reducció important de la producció alimentària (McCormick i altres, 2007).

En el context andorrà, una disminució de les temperatures i de la productivitat vegetal havia de tenir conseqüències majors sobre l'agricultura. Tenint en compte el gradient de temperatures mitjà d'uns 0,65 °C per cada cent metres d'altitud, una baixada de les temperatures estimada d'entre 1 a 2 graus implica una reducció de les cotes útils per cada cultiu d'entre 150 i 300 m; hom mesura fàcilment la implicació, a Andorra, pel que fa a l'àrea cultivable pels cereals i, en conseqüència, la pressió alimentària que devia exercir aquest fet sobre la població.

D'altra banda, no es pot obviar el fet que aquesta disminució de les temperatures també afectava altres àrees d'Europa, entre les quals es trobaven els territoris del comtat de Foix. Davant de la perspectiva d'una disminució de l'activitat agrícola, una possible hipòtesi seria que els comtes de Foix haguessin volgut augmentar la seva activitat política i/o guerrera cap al vessant sud del Pirineu. Així, la clara voluntat dels comtes d'eixamplar el seu àmbit d'influència no només podria haver respost a la continuïtat del conflicte que s'arrossegava des de feia dècades entre els comtes i el bisbat d'Urgell, sinó també a una necessitat d'obtenir nous recursos en els rics territoris del sud del Pirineu i, possiblement, que les seves tropes ocupessin aquests territoris durant un període en què la productivitat de les seves terres era més justa. La conversió en milícies, encara que fos en posicions del tot subordinades, podia donar sortida a la població masculina sobrant. En tot cas, aquesta visió permet entendre la presència continuada de tropes del comte en territori andorrà o d'Urgell, amb el paper de fortificar alguns punts clau de la geografia i, a més, guardar els llocs fortificats.

La baixada del rendiment agrícola i l'augment de la presència militar de Foix a les Valls podrien haver estat dos dels motors que van impulsar la transformació econòmica d'Andorra a finals de la baixa edat mitjana, amb el pas d'una economia orientada essencialment en l'agricultura (cereals i vinya) cap a una economia pastoral. Traslladar l'activitat des dels fons de vall cap als nivells superiors de la muntanya hauria tingut un efecte benèfic des d'ambdós punts de vista. La ramaderia els permetia seguir essent productius des del punt de vista alimentari, encara que el rendiment del cultiu dels cereals hagués baixat considerablement. El creixement d'herba no requereix les mateixes temperatures que el blat, i pot absorbir sense dificultats un augment de les precipitacions. En això es comporta de manera contrària als cereals i la vinya. D'altra banda, els ramats són més mòbils que els cultius i, per aquesta raó, són menys sensibles a la presència de perturbacions exteriors com poden ser bandes armades o les milícies dels comtes. A la vegada són més difícils de quantificar i, així, de sotmetre a imposició o altres exaccions, cosa que sempre és d'agrair en moments de turbulència política.

Finalment, i a títol anecdòtic, el pic de plom detectat per Galofré va tenir lloc entre el pic de sofre i aproximadament els 150 anys posteriors. Correspondria, segons la datació ajustada, al període del 1280 al 1410 o potser un xic més. Ara bé, el Montmalús forma part del territori oriental del Pirineu, àrea geogràfica que és coneguda per contenir pocs metalls, sobretot ferro amb una mica d'or i coure (al Rosselló). Per contra, la part occidental de la serralada ha estat descrita com a "polimetàlica" i és més rica en vetes d'argent en associació amb plom. El trenc entre les dos àrees es troba a l'alçada d'Aulús (Arieja), localitat on possiblement es troben les mines més importants d'argent, plom i zinc de la serralada del Pirineu oriental. Per una coincidència temporal intrigant, aquestes mines van ser explotades per l'argent i el plom durant el període baix medieval, si més no de manera documentada durant el període del 1319 al 1340 (Dubois, 1999). Possiblement les mines s'haurien obert uns anys abans, i no es coneix amb exactitud la data en què es va produir el seu tancament provisional.

Sembla que durant aquest període la seva producció hauria arribat fins a 1,2 tones d'argent cada any, quantitat considerable que, sens dubte, seria l'origen d'una pol·lució a base de plom associat naturalment amb l'argent que s'hauria escampat per via aèria durant els processos de refinatge de la mina. Tenint en compte que els patrons meteorològics d'aquesta regió del Pirineu inclouen la regularitat d'un vent d'oest que entra des de l'Atlàntic, passa per damunt de l'Arieja i acaba trobant-se amb l'aiguavés a la zona del Pas de la Casa i el Montmalús, entenem que no es pot descartar que el plom trobat a l'estany de Montmalús sigui, en realitat, un senyal clar de l'activitat minera d'argent a Aulús. Aquesta hipòtesi, si es pogués verificar, seria coherent amb una voluntat dels comtes de Foix de dinamitzar l'activitat econòmica en els seus territoris, en el mateix moment temporal que perseguen objectius militars a Andorra i al sud del Pirineu, objectius que, sens dubte, requerien els mitjans econòmics corresponents.

Referències

- ARMENGOL, L.: *Una mostra del nostre llegat històric: 600 fets institucionals, econòmics i socials*. Andorra. Grafinter, 1985. Dip. legal: AND 134-1985.
- BASCOMPTÉ, D.: *Diplomatari de la Vall d'Andorra: segle XVII*. Govern d'Andorra, Ministeri de Cultura, 1997.
- BASCOMPTÉ, D.: "Andorra agrícola dels segles XVI al XVIII: entre terres i prats" a *Estudis d'història agrària*, 18, 2005. p. 47-65.
- BATLLE, C.: *L'aljama de la Seu d'Urgell medieval: una comunitat jueva del Pirineu català*. Barcelona. Ed. Rafael Dalmau, 2016. ISBN: 978-8423208180.
- BAUCH, M.: "The day the sun turned blue. A volcanic eruption in the early 1460s and its possible climatic impact – a natural disaster perceived globally in the late Middle Ages?" a Schenk, G.J. (Ed.). *Historical Disaster Experiences. A comparative and transcultural survey between Asia and Europe*. Heidelberg, 2015.
- DUBOIS, C.: "Les mines de plomb argentifère et zinc d'Aulus-les-Bains (Ariège)" a *Archéologie du Midi médiéval*, 17, 1999. p. 187-211.
- FEI, J., & ZHOU, J.: "The possible climatic impact in China of Iceland's Eldgja eruption inferred from historical sources" a *Climatic change*, 76(3-4), 2006. p. 443-457.
- GALOFRÉ PENACHO, M-S.: *Climate and environmental reconstruction based on multiproxy analyses from Montmalús Lake (Andorra)*. Grau in geology degree final project, Universitat Autònoma de Barcelona, 2019.
- GASCÓN, C.: *La catedral saquejada: el comte de Foix i la invasió del bisbat d'Urgell a la fi del segle XII*. la Seu d'Urgell. Ed. Salòria, 2015. ISBN: 978-8494250491.
- GAO CHAOCHAO et al.: "The 1452 or 1453 A.D. Kuwae Eruption Signal Derived from Multiple Ice Core Records: Greatest Volcanic Sulfate Event of the Past 700 Years" a *Journal of Geophysical Research*, 117, D12107. 2006.
- GRÄSLUND, B., i PRICE, N.: "The «dust veil event» of AD 536 in critical perspective" a *Antiquity*, 86, 332, June 2012. p. 428-443.
- LAVIGNE, F., DEGEAI, J. P., KOMOROWSKI, J. C., GUILLET, S., ROBERT, V., LAHITTE, P., ... & BELIZAL, E. (2013). "Source of the great AD 1257 mystery eruption unveiled, Samalas volcano, Rinjani Volcanic Complex, Indonesia.", en *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 110(42), p. 16742-16747.
- MCCORMICK, M., DUTTON, P.E. and MAYEWSKI, P.A.: "Volcanoes and the Climate Forcing of Carolingian Europe, A.D. 750-950" a *Speculum*, 82, 2007. p. 865-895.
- STOTHERS, R.B.: "The Great Tambora Eruption of 1815 and its Aftermath" a *Science*, 224, 1984. p. 1191-1198.
- WARD, A.: *La vinya*. Ed. Createspace, 2017. ISBN: 978-1979609630.
- WARD, P. L.: "Sulfur dioxide initiates global climate change in four ways" a *Thin solid films*, 517(11), 2009. p. 3188-3203.