

UNIVERSIDAD NACIONAL DE LA PLATA
FACULTAD DE CIENCIAS NATURALES Y MUSEO

REVISTA DEL MUSEO DE LA PLATA
(NUEVA SERIE)

UN NUEVO BORATO-CARBONATO HIDRATADO DE TINCALAYU, SALTA, ARGENTINA

LORENZO FRANCISCO ARISTARAIN ⁽¹⁾

RESUMEN

Se presentan los datos de un nuevo mineral encontrado incluido en bórax y kernita en la mina Tincalayu, Salta, Argentina.

El mineral es Rómbico Dipiramidal, $2/m\ 2/m\ 2/m$, grupo espacial $Pcmm$?, $a = 9,85\ \text{Å}$, $b = 13,54\ \text{Å}$, $c = 8,01\ \text{Å} \pm 0,02$, $a:b:c = 0,727 : 1 : 0,592$, volumen de la celda $1068,3\ \text{Å}^3$.

Los cristales son idiomorfos, están aplanados según $\{010\}$ y limitados lateralmente por $\{101\}$, lo que les da forma de rombos que tienen los extremos truncados por $\{100\}$, también se encuentran cristales elongados según $[101]$ sugiriendo simetría pseudomonoclínica con un ángulo de extinción de 39° , las dimensiones alcanzan hasta $100 \times 30 \times 10\ \mu$ y están incluidos en bórax y kernita.

Las líneas más importantes en el diagrama de polvo con rayos X, en Å , son: $7,94\ (10)$, $3,95\ (6)$, $3,83\ (5)$, $3,54\ (8)$, $3,32\ (8)$, $2,10\ (6)$, $2,04\ (5)$, $1,92\ (5)$, $1,85\ (5)$.

Es transparente, incoloro, tiene brillo vítreo, la dureza es 3, la densidad medida es $2,15\ \text{gr cm}^{-3}$ y presenta dos clivajes $\{010\}$ excelente y $\{101\}$ bueno. Ópticamente es biáxico positivo, $\alpha = 1,503$, $\beta = 1,523$, $\gamma = 1,559 \pm 0,001$ luz de Na, $2V = 75^\circ$, $\gamma - \alpha = 0,056$, $r < v$, $Z = a$, $Y = c$.

La cantidad del mineral es ínfima por lo cual no se pudo realizar el análisis químico cuantitativo; se disuelve completamente con efervescencia con HCl 1:1 dando una fuerte reacción de boro. Se supone que se trata de un borato-carbonato hidratado posiblemente de Na o bien de Na, Mg y Ca.

Palabras clave: Mineralogía - Nuevo borato carbonato hidratado - Tincalayu.

ABSTRACT

A NEW HYDRATED BORATE-CARBONATE FROM TINCALAYU, SALTA, ARGENTINA. Data for a new mineral found included in borax and kernite at Tincalayu, Salta, Argentina are presented.

(1) Facultad de Ciencias Naturales y Museo, Universidad Nacional de La Plata y Consejo Nacional de Investigaciones Científicas y Técnicas.

The mineral is rhombic-dipyramidal, $2/m\ 2/m\ 2/m$, space group $Pccm$?, $a = 9,85\ \text{\AA}$, $b = 13,54\ \text{\AA}$, $c = 8,01\ \text{\AA} \pm 0,02\ \text{\AA}$, $a:b:c = 0,728:1:0,592$, cell volume = $1068,3\ \text{\AA}^3$.

The crystals are euhedral, flattened on {010} and bounded by {101} yielding a diamond shape but with two points of the diamond truncated by {100}. Some crystals are elongated on [101] resembling monoclinic symmetry with an extinction angle of 39° . The elongated crystals measure $100 \times 30 \times 10\ \mu$.

The strongest line on the X-ray powder photograph are in \AA : 7.94 (10), 3.95 (6), 3.83 (5), 3.54 (8), 3.32 (8), 2.10 (6), 2.04 (5), 1.92 (5), 1.85 (5).

The mineral in transparent, colorless with vitreous luster, the hardness is 3, the measured density is $2,15\ \text{gr cm}^{-3}$. The cleavages are {010} perfect, {101} good. It is biaxial positive, $\alpha = 1,503$, $\beta = 1,523$, $\gamma = 1,559 \pm 0,001$ Na light, $2V = 75^\circ$, $\alpha - \gamma = 0,056$, $r < v$, $Z = a$, $X = b$, $Y = c$.

The amount of the mineral is extremely small, which precluded a chemical analysis. It dissolves in HCl 1:1 with effervescence giving a strong boron reaction. It is assumed that it is a hydrated borate-carbonate, possibly of Na or Na, Mg and Ca.

Key words: Mineralogy - New hydrated borate-carbonate - Tincalayu.

INTRODUCCION

La investigación sistemática de la mineralogía del depósito de bórax Tincalayu, ubicado en la provincia de Salta, Argentina, condujo al descubrimiento del nuevo mineral hace 15 años aproximadamente.

Este mineral fue estudiado entonces en forma conjunta con C. S. Hurlbut de Harvard University, USA y R. C. Erd. del United States Geological Survey, Menlo Park, USA.

El mineral fue encontrado en forma dispersa en especímenes de bórax y kernita, pero en cantidades tan reducidas que no fue posible realizar el análisis químico cuantitativo para completar su descripción. Por ello, en ese momento se decidió en forma conjunta postergar la publicación de los resultados obtenidos y avanzar en el estudio de todos los ejemplares disponibles; también se propuso visitar nuevamente el depósito para tratar de localizar concentraciones mayores visibles a ojo desnudo.

El yacimiento de referencia fue visitado en varias oportunidades por este autor con posterioridad a aquel hallazgo, pero no se tuvo éxito en la búsqueda emprendida.

Dado el tiempo transcurrido y habiendo una nueva generación de mineralogistas, que desde hace algunos años ha continuado el estudio de los minerales de los depósitos de boratos argentinos, este autor ha decidido dar a conocer los viejos resultados para estimular en ellos la búsqueda e investigación del nuevo mineral que se presenta en este trabajo.

Si en el futuro se encuentran cantidades suficientes para completar la descripción del nuevo mineral, deberá entonces someterse a consideración de la Commission on New Minerals and Mineral Names de la International Mineralogical Association.

El depósito de Tincalayu se encuentra ubicado en la parte norte del Salar del Hombre Muerto, en el límite entre las provincias de Salta y Catamarca, a unos 400 metros sobre el nivel del mar; se puede llegar a él por automotor desde la estación Salar Pocitos del Ferrocarril G. M. Belgrano, la cual está a unos 146 km al norte de la mina.

MODO DE PRESENTARSE

El yacimiento donde se encontró el mineral es una antigua acumulación evaporítica de bórax (límite Mioceno-Plioceno), de tipo playa, que fue sepultada por sedimentos continentales del

Terciario superior y Cuaternario (Alonso, 1986) y fueron luego plegados, fracturados e intruidos por basaltos.

Todos esos eventos produjeron en el depósito de bórax transformaciones mineralógicas de bajo grado; la presencia de magnesio dio un carácter muy peculiar a la mineralogía del mismo, que ha hecho de Tincalayu una localidad muy conocida en el mundo.

El depósito está formado esencialmente por bórax en parte transformado a kernita (Hurlbut *et al.*, 1973), ezcurrita (Hurlbut y Aristarain, 1967b) y ameghinita (Aristarain y Hurlbut, 1967a) a los que se agregan cantidades muy pequeñas de otros boratos raros tales como rivadavita (Hurlbut y Aristarain, 1967a), macallisterita (Aristarain y Hurlbut, 1967b), aristarainita (Hurlbut y Erd, 1974), kurnakovita (Aristarain y Rossetto, 1992), proberita (Aristarain, 1991), estroncioginorita, y comunes ulexita (Aristarain *et al.* 1977), tincalconita y el silicoborato searlesita (Aristarain *et al.* 1977), además de magnesita, dolomita, sanbornita y otros minerales clásticos comunes. Las composiciones de estos minerales pueden verse en la Tabla 4.

La descripción original del depósito corresponde a Catalano (1964, escrito en 1927), del que luego se ocuparon Muessig y Allen (1957) y últimamente Alonso (1986).

El nuevo mineral se presenta en cantidades sumamente pequeñas y como se indicó disperso en bórax y kernita; los cristales son rómbicos, idiomorfos y aislados aunque también se han observado agregados subparalelos. Los individuos son muy pequeños, las dimensiones de los cristales de mayor tamaño son 100 por 30 por 10 μ ; tienen el aspecto de plaquitas rómbicas, aplanadas según {010}, que es la forma predominante, que están limitadas por el prisma de segundo orden {101}, bien desarrollado, y en los vértices laterales aparece el pinacoide frontal {100} de dimensiones reducidas (Fig. 1).

También se ven hábitos tabulares en cristales elongados según [101] sugiriendo una falsa simetría monoclinica con un ángulo de extinción de 39° (Fig. 1).

El mineral es ortorrómbico y pertenece a la clase Rómbica Dipiramidal, $2/m 2/m 2/m$; en la Tabla 1 se da la relación axial y las coordenadas de las formas presentes.

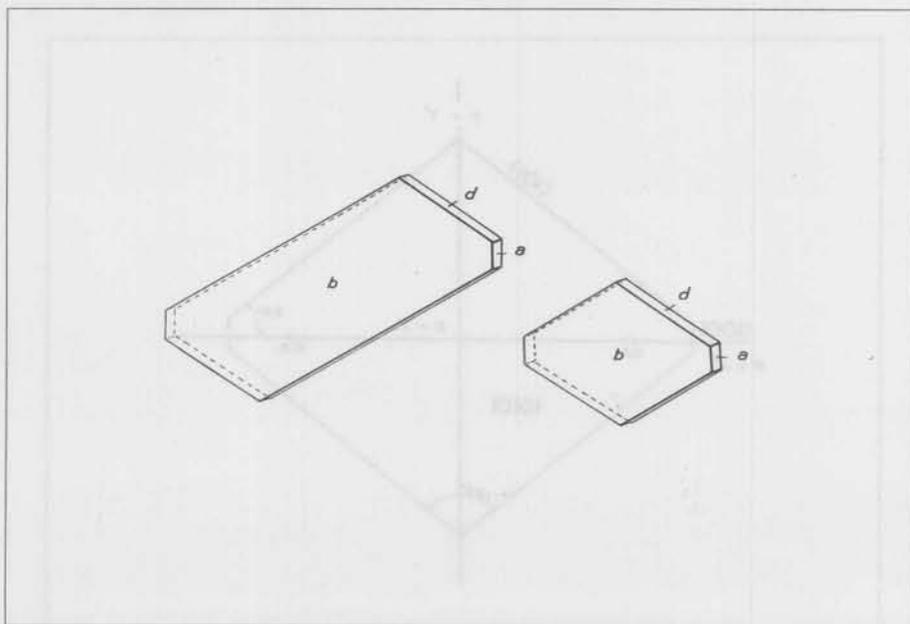


FIG. 1 - Dibujos idealizados de cristales del nuevo mineral mostrando sus hábitos comunes tabular y rómbico.

TABLA 1. Tabla de ángulos del nuevo mineral*

Sistema rómbico, Clase Rómbica Dipiramidal $2/m\ 2/m\ 2/m$

$$a:b:c = 0,727 : 1 : 0,592$$

$$q_1 : r_1 : p_1 = 0,727 : 1,228 : 1$$

$$p_0 : q_0 : r_0 = 0,814 : 0,592 : 1$$

$$r_2 : p_2 : q_2 = 1,689 : 1,375 : 1$$

Forma	φ	$\rho = C$	φ_1	$\rho_1 = A$	φ_2	$\rho_2 = B$
<i>b</i> 010	00°00'	90°00'	90°00'	90°00'	0°00'
<i>a</i> 100	90°00'	90°00'	0°00'	0°00'	90°00'
<i>d</i> 101	90°00'	39°09'	0°00'	50°51'	50°51'	90°00'

* calculada con valores de la celda unitaria.

PROPIEDADES FISICAS Y OPTICAS

El mineral es incoloro y transparente pero en los agregados cristalinos toma color gris blanquecino, el brillo es vítreo, la dureza es 3 y la densidad medida por el método de inmersión en una solución de acetona en bromoformo es $2,15\text{ gr cm}^{-3}$; presenta dos clivajes que son {010} excelente y {101} bueno.

Es ópticamente biáxico positivo, $\alpha = 1,503$, $\beta = 1,523$, $\gamma = 1,559 \pm 0,001$ luz de Na, $2V = 75^\circ$, la birrefringencia es 0,056, la dispersión $r < v$, la orientación del elipsoide de los índices de refracción es $Z = a$, $X = b$, $Y = c$ (Fig. 2).

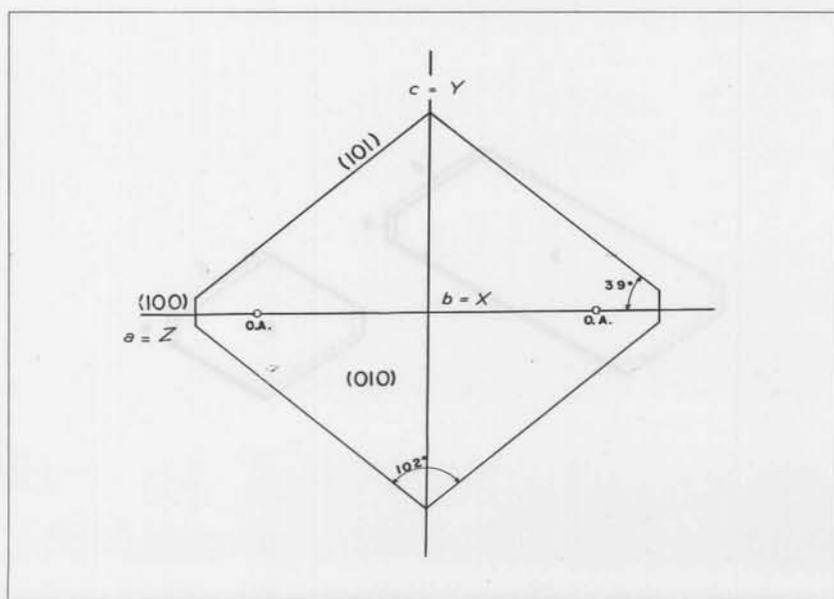


FIG. 2 - Orientación óptica del nuevo mineral proyectada en (010).

ESTUDIOS CON RAYOS X

La investigación de la celda unitaria se llevó a cabo mediante fotografías tomadas con una cámara de precesión utilizando radiación de molibdeno y filtro de circonio.

En la Tabla 2 se dan las dimensiones de la celda unitaria, la relación axial y el grupo espacial.

En la Tabla 3 se indican los valores d obtenidos en el diagrama de polvo con rayos X, usando radiación de cobre y filtro de níquel y una cámara tipo Debye y Scherrer, de 114,6 mm de diámetro. Debido a la pequeña cantidad de mineral disponible la calidad de las fotografías obtenidas fue sólo regular.

TABLA 2. Datos de la celda unitaria del nuevo mineral.

$a \text{ \AA} = 9,85 (2)$	Grupo espacial $P cmm ?$
$b \text{ \AA} = 13,54 (2)$	densidad medida $2,15 \text{ gr cm}^{-3}$
$c \text{ \AA} = 8,01 (2)$	Peso molecular calculado con densidad
Volumen de la celda = $1068,3 \text{ \AA}^3$	$2,15 \text{ gr cm}^{-3}$:
$a:b:c = 0,727:1:0,592$	$Z = 1383$
	$Z = 691,5$

TABLA 3. Datos del diagrama de polvo con rayos X del nuevo mineral de Tincalayu, Salta, Argentina.

d observado*	hkl	I	d observado*	hkl	I
7,94	110	10	2,51	331-142	3
6,20	101	1	2,47	023-400	1
5,59	120	1	2,42	410-123	3
4,65	210	4	2,29	033-242	4
3,95	031	6	2,19	332	2
3,83	012	5	2,10	402-043	6
3,54	221-343	8	2,04	313-342	5
3,32	230	8	1,99	004-440	4
3,09	202	3	1,96	104	4
2,99	032	4	1,92	024	5
2,87	132	4	1,89	121	1
2,79	240	4	1,85	204	5
2,68	003	1	1,81	403	1
2,63	241-013	1	siguen 30 líneas con $I < 2$		

* con cámara de polvo tipo Debye y Scherrer, 114,6 mm de diámetro, radiación Cu, filtro Ni, intensidades estimadas visualmente.

COMPOSICION QUIMICA

Como se indicó, hasta el presente no se ha podido reunir suficiente cantidad de mineral para realizar un análisis químico cuantitativo por vía húmeda.

El mineral se disuelve completamente en una solución de HCl 1:1 con efervescencia y da una fuerte reacción a las pruebas del boro, indicando que se trataría de un borato-carbonato. Se hace notar

que ninguno de los minerales del grupo de los boratos conocidos hasta el presente efervesce con ácido clorhídrico; sin embargo se conocen solamente cuatro boratos-carbonatos y todos ellos presentan efervescencia con ese ácido. Estos minerales son: gaudefroyita (Jouravsky y Permingeat, 1964), carboborita (Hsieh *et al.*, 1964), borcarita (Pertsev *et al.*, 1965) y sakhaita (Ostrovskaya *et al.*, 1966).

En la Tabla 4 se indica la composición química de los diversos minerales con boro de Tincalayu; en ella puede apreciarse la característica presencia de boratos de sodio que contienen magnesio y calcio. Esa mineralogía sugiere que estos cationes podrían tomar parte de la fórmula del nuevo mineral, la cual sería del tipo: $n_1 \text{Na}_2\text{O} n_2 \text{MgO} n_3 \text{CaO} n_4 \text{B}_2\text{O}_3 n_5 \text{CO}_2 n_6 \text{H}_2\text{O}$, suponiendo que el carbono reemplaza la totalidad o parte del boro en coordinación triangular.

TABLA 4. Minerales presentes en el depósito de Tincalayu, Salta, Argentina y su composición química.

Minerales	Na ₂ O	MgO	CaO	SrO	BaO	B ₂ O ₃	CO ₂	SiO ₂	H ₂ O	Relación MO:B ₂ O ₃
Con boro										
searlesita	1					1		4	2	1:1
kurnakovita		2				3			15	1:1,5
ulexita	1		2			5			16	1:1,66
probertita	1		2			5			10	1:1,66
bórax	1					2			10	1:2
tincalconita	1					2			5	1:2
kernita	1					2			4	1:2
ezcurrita	2					5			7	1:2,5
ameghinita	1					3			4	1:3
rivadavita	3	1				12			22	1:3
aristarainita	1	1				6			8	1:3
macallisterita		2				6			15	1:3
estroncioginorita			1	1		7			8	1:3,5
Otros										
sanbornita					1			2		
magnesita		1					1			
dolomita		1	1				2			
halita (NaCl)	x									
nahcolita (NaHCO ₃)	x									
total de veces presente	12	6	4	1	1	13	2	2	13	

Utilizando el volumen de la celda unitaria ($1068,3 \text{ \AA}^3$) y la densidad medida ($2,15 \text{ gr cm}^{-3}$) se calculó el peso molecular del nuevo mineral que es 1383 con Z igual a uno o 691,5 con Z igual a dos.

Con la composición general sugerida se computaron las numerosas composiciones posibles tomando valores para Na₂O, MgO y CaO de cero a 2, para B₂O₃ y CO₂ de 1 a 4 y para H₂O de 4 a 12. Estos valores fueron elegidos considerando los indicados en la Tabla 4. El número de fórmulas resultantes fue 3888 para cada una de las cuales se determinó el peso molecular y la composición química porcentual. Entre todas ellas se seleccionaron aquellas cuyos pesos moleculares estaban comprendidos entre 685,2 y 698,1, que se fijaron con la celda unitaria referida para densidades 2,13 y $2,17 \text{ gr cm}^{-3}$, es decir con la densidad medida $\pm 0,02$. Así, las 3888 fórmulas se redujeron a 22, una de las cuales podría corresponder a la del nuevo mineral.

Con posterioridad se calculó el índice medio de refracción para cada una de esas 22 fórmulas utilizando la ley de Gladstone y Dale, adaptada para sustancias minerales por Larsen y Berman (1934), que relaciona ese índice con los componentes químicos de los minerales y las energías específicas de refracción. Los resultados obtenidos se compararon con el índice de refracción medio del nuevo mineral, calculado con los 3 índices de refracción medidos para el mismo, que es igual a $n \approx 1,528$. Con esta comparación se seleccionaron los valores comprendidos entre $n = 1,528 \pm 0,005$, es decir entre 1,523 y 1,533, lo cual permitió reducir las 22 fórmulas posibles a sólo 6, que tienen pesos moleculares e índices medios muy cercanos a los calculados para el nuevo mineral.

Este método sugiere que la fórmula podría ser alguna de las seis que siguen:

- 1) $2 \text{Na}_2\text{O} \cdot 4 \text{B}_2\text{O}_3 \cdot 2 \text{CO}_2 \cdot 11 \text{H}_2\text{O}$ (p.m. 688,7 y $n = 1,5285$).
- 2) $\text{Na}_2\text{O} \cdot \text{MgO} \cdot 4 \text{B}_2\text{O}_3 \cdot 3 \text{CO}_2 \cdot 10 \text{H}_2\text{O}$ (p.m. 693,0 y $n = 1,5263$).
- 3) $\text{Na}_2\text{O} \cdot 2 \text{CaO} \cdot \text{MgO} \cdot 3 \text{B}_2\text{O}_3 \cdot 2 \text{CO}_2 \cdot 10 \text{H}_2\text{O}$ (p.m. 691,5 y $n = 1,5286$).
- 4) $2 \text{Na}_2\text{O} \cdot \text{CaO} \cdot \text{MgO} \cdot 2 \text{B}_2\text{O}_3 \cdot 3 \text{CO}_2 \cdot 11 \text{H}_2\text{O}$ (p.m. 689,8 y $n = 1,5264$).
- 5) $2 \text{Na}_2\text{O} \cdot 2 \text{MgO} \cdot 2 \text{B}_2\text{O}_3 \cdot 3 \text{CO}_2 \cdot 12 \text{H}_2\text{O}$ (p.m. 692,1 y $n = 1,5293$).
- 6) $2 \text{Na}_2\text{O} \cdot \text{CaO} \cdot 2 \text{B}_2\text{O}_3 \cdot 4 \text{CO}_2 \cdot 11 \text{H}_2\text{O}$ (p.m. 693,5 y $n = 1,5283$).

Se continúa trabajando para localizar y/o concentrar una cantidad suficiente de mineral para completar la descripción del mismo.

AGRADECIMIENTO

Se agradece a la Profesora Dra. Hebe D. Gay por facilitar la tarea de computación referida.

REFERENCIAS

- ALONSO, R. N., 1986, *Ocurrencia, posición estratigráfica y génesis de los depósitos de boratos de la Puna Argentina*, Tesis Doctoral, Univ.Nac. Salta, Argentina, inédita, 196 pp.
- ARISTARAIN, L. F. y HURLBUT, C. S., 1967a, Ameghinite, $\text{Na}_2\text{O} \cdot 3 \text{B}_2\text{O}_3 \cdot 4 \text{H}_2\text{O}$, a new borate from Argentina, *Amer. Mineral.*, 52, 935-945.
- ARISTARAIN, L. F. y HURLBUT, C. S., 1967b, Macallisterite, $2 \text{MgO} \cdot 6 \text{B}_2\text{O}_3 \cdot 15 \text{H}_2\text{O}$, from Salta, Argentina, *Amer. Mineral.*, 52, 1776-1784.
- ARISTARAIN, L. F., RUSANSKY, J. E. y WALKER DE SCHOOLA, M. F., 1977, Ulexita de Sijes, provincia de Salta, Argentina, y características generales de la especie, *Obra del Centenario del Museo de La Plata*, Tomo IV, 23-47.
- ARISTARAIN, L. F., ERD, R. C. y NICOLLI, H. B., 1977, Searlesita, $\text{Na} \cdot \text{B} \cdot \text{Si}_2\text{O}_5 \cdot (\text{OH})_2$, de Tincalayu, provincia de Salta, Argentina, *Obra del Centenario del Museo de La Plata*, Tomo IV, 49-61.
- ARISTARAIN, L. F., 1991, Probertita, $\text{Na} \cdot \text{Ca} \cdot \text{B}_5\text{O}_9 \cdot 5 \text{H}_2\text{O}$, de Tincalayu, Salta, Argentina, *Revista del Museo de La Plata*, Tomo X, Geología 95, 277-292.
- ARISTARAIN, L. F. y ROSSETTO, H. L., 1992, Kurnakovita, $2 \text{MgO} \cdot 3 \text{B}_2\text{O}_3 \cdot 15 \text{H}_2\text{O}$, de Tincalayu, Salta, Argentina, *Revista del Museo Argentino Cs. Ns. B. Rivadavia*. En prensa.
- CATALANO, L. R., 1964 (escrito en 1927), *Estudio geológico-económico del Salar del Hombre Muerto, Puna de Atacama*, Estudios Geol. y Minería Económica, Serie Argentina 4, Buenos Aires, 131 pp. + apéndice + 39 láminas y mapas. Subsec. Minería.
- HSIEH, H., CHIEN, T. y LIU, L., 1964, El nuevo mineral carboborita, $\text{Mg} \cdot \text{Ca}_2 \cdot (\text{CO}_3 \cdot \text{B}_2\text{O}_5) \cdot 10 \text{H}_2\text{O}$, *Scientia Sinica*, 13, 813-821 (en ruso), *Mineralogical Abstract*, 1965, 17, 75-76; *Amer. Mineral.*, 1965, 50, 262-263.
- HURLBUT, C. S. y ARISTARAIN, L. F., 1967a, Rivadavite, $\text{Na}_6 \cdot \text{Mg} \cdot \text{B}_{24} \cdot \text{O}_{40} \cdot 22 \text{H}_2\text{O}$, a new borate from Argentina, *Amer. Mineral.*, 52, 326-335.
- HURLBUT, C. S. y ARISTARAIN, L. F., 1967b, Ezcurrite, $2 \text{Na}_2\text{O} \cdot 5 \text{B}_2\text{O}_3 \cdot 7 \text{H}_2\text{O}$: A Restudy, *Amer. Mineral.*, 52, 1048-1059.

- HURLBUT, C. S., ARISTARAIN, L. F. y ERD, R. C., 1973, Kernite from Tincalayu, Salta, Argentina, *Amer. Mineral.*, 58, 308-313.
- HURLBUT, C. S. y ERD, R. C., 1974, Aristarainite, $\text{Na}_2\text{O MgO } 6 \text{ B}_2\text{O}_3 \cdot 10 \text{ H}_2\text{O}$, a new mineral from Salta, Argentina, *Amer. Mineral.*, 59, 647-651.
- JOURAVSKY, G. y PERMINGEAT, F., 1964, La gaudefroyite, une nouvelle espece minérale, *Bull. Soc. Franc. Minér. Crist.*, 87, 216-229. Mineralogical Abstract, 1965, 17, 76; *Amer. Mineral.*, 1965, 50, 806-807.
- LARSEN, E. S. y BERMAN, H., 1934, *The microscopic determination of the nonopaque minerals*, U. S. Geological Survey, Bulletin 848, 266 pp.
- MUESSIG, S. y ALLEN, R. D., 1957, Ezcurrite ($2 \text{ Na}_2\text{O } 5 \text{ B}_2\text{O}_3 \cdot 7 \text{ H}_2\text{O}$), a new sodium borate from Argentina: Occurrence, mineralogy and associated minerals, *Econ. Geol.*, 52, 426-437.
- OBSTROVSKAYA, I. V., PERTSEV, N. N. y NIKITINA, I. B., 1966, Sakhaita un nuevo carbonato-borato de calcio y magnesio, *Zapiski Vses. Mineralog. Obshch.*, 95, 193-202 (en ruso). Mineralogical Abstract, 1967, 18, 46-47; *Amer. Mineral.*, 1966, 51, 1817.
- PERTSEV, N. N., OSTROVSKAYA, I. V. y NIKITINA, I. B., 1965, El nuevo mineral borcarita, *Zapiski Vses. Mineralog. Obshch.*, 94, 180-186 (en ruso). Mineralogical Abstract, 1965, 17, 398; *Amer. Mineral.*, 1965, 50, 2097.

Manuscrito recibido el 18 de agosto de 1992