

troden mit 6 mm Durchmesser durch Auftragen einer etherschen Chloranillösung auf die Basisfläche und Verdunsten des Lösungsmittels oberflächlich dotiert. Die Aktivität dieser Elektroden wurde durch Aufnahme cyclischer Voltammogramme (Abb. 1) und durch potentiostatische Messungen (Abb. 2) in gerührten, wässrigen NADH-Lösungen über-

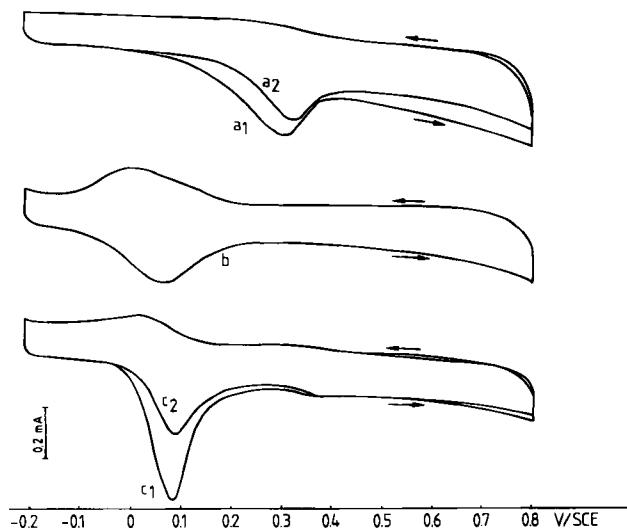


Abb. 1. Cyclische Voltammogramme zur Untersuchung der NADH-Oxidation im gerührten Elektrolyten. Startpotential -200 mV/SCE, 100 mV/s, Empfindlichkeit 1 mA/Schreiberbreite. Elektrolyt: 1 mM NADH, 0,1 M Phosphatpuffer pH=7, 1 M NaCl. a₁ undotierte Graphitelektrode (\varnothing 6 mm) beim ersten und a₂ beim zweiten Durchlauf; b mit 4 nmol Chloranil dotierte Graphitelektrode bei Abwesenheit von NADH; c₁ in Gegenwart von NADH beim ersten und c₂ beim zweiten Durchlauf mit stationären Verhältnissen.

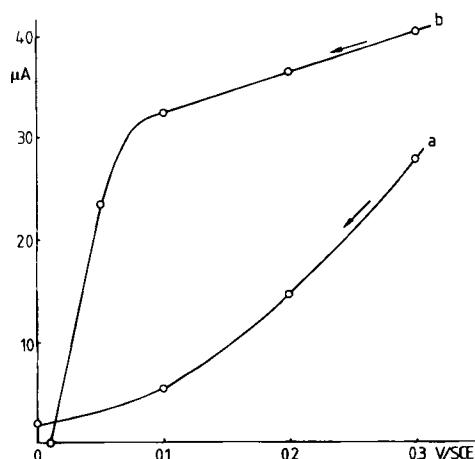


Abb. 2. Stationäre Strom-Spannungs-Kurven bei gerührtem Elektrolyten (wie in Abb. 1). a undotierte Graphitelektrode, b mit 120 nmol Chloranil dotierte Graphitelektrode.

prüft. Die cyclischen Voltammogramme der NADH-Oxidation an der undotierten Graphitelektrode beim ersten (Abb. 1, Kurve a₁) und beim zweiten Durchlauf (Abb. 1, Kurve a₂) zeigen Peakpotentiale bei 320 bzw. 335 mV/SCE; nach dem zweiten Durchlauf blieb die Peakhöhe konstant. Kurve b in Abbildung 1 wurde an einer mit 20 μ l 0,2 mM Chloranillösung (4 nmol) dotierten Graphitelektrode in NADH-freier Lösung erhalten, c₁ in Gegenwart von NADH beim ersten, c₂ beim zweiten Durchlauf; auch hier blieb die Peakhöhe nach dem zweiten Durchlauf konstant. Bei der durch Chloranil katalysierten anodischen NADH-Oxidation wird das Maximum bei 90 mV/SCE beim anodischen Durchlauf höher; diese Zunahme ist auf eine Überlagerung des anodischen Chloranil- und des anodischen NADH-Peaks zurückzuführen. Die bei der undotierten Elektrode bei höheren Potentialen beobachteten anodischen NADH-Peaks fehlen in Gegenwart von Chloranil.

Besonders augenfällig wird der katalytische Effekt bei der Aufnahme stationärer Strom-Spannungs-Kurven bei potentiostatisch vorgegebenen Elektrodenpotentialen (Abb. 2). Hierzu wurden die Elektroden mit einem großen Überschuß an Chloranil dotiert (20 μ l einer 6 mM Lösung entsprechend 120 nmol). Die Strommessungen erfolgten 2 min nach jeder Potentialeinstellung. Die Kennlinie der undotierten Elektrode (Abb. 2a) entspricht dem exponentiellen Verlauf einer irreversiblen Reaktion. Die Kennlinie der dotierten Elektrode (Abb. 2b) fällt beim Unterschreiten des Normalredoxpotentials des Chloranils steil ab. Dieser charakteristische Kurvenverlauf lässt sich durch die Potentialabhängigkeit der Oberflächenkonzentration der oxidierten Form des Redoxkatalysators erklären, die durch die Nernstsche Gleichung wiedergegeben wird. Das Plateau wird durch den Diffusionsgrenzstrom bestimmt.

Coulometrische Daten, die durch Integration der Fläche unter den potentiostatischen Strom-Zeit-Kurven (5 ml 1 mM NADH, 100 mV/SCE, 2 h) erhalten wurden, zeigen unter Berücksichtigung der bei 340 nm photometrisch ermittelten Konzentrationsabnahmen von NADH an, daß sowohl bei der undotierten als auch bei der dotierten Elektrode ein Zwei-Elektronen-Übergang stattfindet. Desaktivierung durch Verunreinigung der Elektrode wurde bei der dotierten Elektrode bei 100 mV/SCE und bei der undotierten Elektrode bei 300 mV/SCE nach einer Versuchsdauer von 2 h nicht festgestellt. Die undotierte Elektrode wurde jedoch bei einem Arbeitspotential von 100 mV/SCE desaktiviert.

Unspezifische Anzeigen können durch eine Differentialschaltung einer Enzym-Chloranil- gegen eine Chloranilelektrode eliminiert werden.

Die Chloranilelektrode kann auch mit einer aufliegenden Dialysemembran betrieben werden. Um die dadurch bedingte Empfindlichkeitsabnahme in Grenzen zu halten, müssen die Membran und der Elektrolytfilm möglichst dünn sein.

Die außergewöhnliche Aktivität des Chloranils gegenüber NADH kann sehr wahrscheinlich auf die Bildung eines Charge-Transfer-Komplexes zurückgeführt werden. Benzoquinon, dessen Redoxpotential nur um 30 mV niedriger ist, ist dagegen katalytisch inaktiv. Die systematische Suche nach weiteren geeigneten Katalysatoren zur NADH-Oxidation, die von Kohleelektroden irreversibel adsorbiert werden, führte zu mehreren heterocyclischen Verbindungen^[5].

Eingegangen am 28. April,
ergänzt am 15. Dezember 1980 [Z 746]

- [1] W. J. Blaedel, R. A. Jenkins, Anal. Chem. 47, 1337 (1975).
- [2] D. Chi-Sing, Th. Kuwana, Anal. Chem. 50, 1315 (1978).
- [3] E. A. Braude, J. Hannah, R. Linstead, J. Chem. Soc. 1960, 3249.
- [4] H. Alt, H. Binder, A. Köhling, G. Sandstede, Angew. Chem. 83, 502 (1971); Angew. Chem. Int. Ed. Engl. 10, 514 (1971).
- [5] H. Huck, H.-L. Schmidt, noch unveröffentlicht.

Diastereoselektive Synthese von β -Nitro- und β -Aminoalkoholen

Von Dieter Seebach, Albert K. Beck, Friedrich Lehr, Thomas Weller und Ernest W. Colvin^[*]

Die Nitroaldol- oder Henry-Reaktion^[1] ist ein wichtiger Prozeß zur Knüpfung von C—C-Bindungen. Er führt nach Weg (a)^[1a] von Aldehyden und Nitroalkanen zu β -Nitroalkoholen (1), welche – außer bei Cyclisierungen^[2] – als Gemische der beiden möglichen diastereomeren Enantiomerenpaare entstehen (RR/SS und RS/SR). Es überwiegt in der

[*] Prof. Dr. D. Seebach, A. K. Beck, Dr. F. Lehr, Dipl.-Chem. Th. Weller, Dr. E. W. Colvin
Laboratorium für Organische Chemie
der Eidgenössischen Technischen Hochschule
ETH-Zentrum, Universitätstraße 16, CH-8092 Zürich (Schweiz)

Regel ein Diastereomer A; das Verhältnis A : B (bis 3:1) bleibt erhalten, wenn man das Gemisch mit *tert*-Butyl(dimethylsilyl)(TBDMS)-chlorid/Imidazol in Dimethylformamid^[3] zu (2) umsetzt.

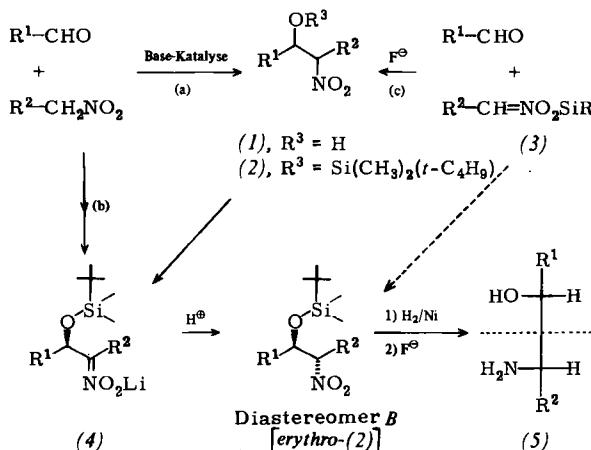


Tabelle 1. Anreicherung des Diastereomers B (wahrscheinlich *erythro*-Form, siehe Text) in klassisch hergestellten [1a] Isomerengemischen (2) durch Deprotonierung der O-Silylnitroalkohole zu (4) und Tieftemperaturprotonierung. Die angegebenen Verhältnisse wurden durch quantitative ¹³C-NMR-Spektroskopie bestimmt. Die Signale der α -Nitro-C-Atome liegen bei $\delta = 85\text{--}98$, diejenigen der α -Silyloxy-C-Atome bei $\delta = 70\text{--}78$; in den Diastereomeren B erscheinen die α -Nitro-Signale bei höherem, die α -Silyloxy-Signale jedoch bei tieferem Feld als in den entsprechenden Diastereomeren A. Anders als in B sind die Methylgruppen der TBDMS-Funktion in A isochron. Alle Verbindungen ergaben befriedigende Elementaranalysen. Für Weg (c) wurde über Molekularsieb getrocknetes Bu₄NF verwendet [vgl. H. Gerlach, P. Künzler, Helv. Chim. Acta 61, 2503 (1978)].

Substituenten		Verhältnis der Diastomere B : A (% B) in (2)		
		vor Deprotonierung zu (4)	nach Proto- nierung von (4)	aus (3) Weg (c)
R¹	R²			
C ₃ H ₇	C ₂ H ₅	1 : 2.5 (29)	9 : 1 (90)	>20 : 1 (>95)
CH(CH ₃) ₂	C ₂ H ₅	1 : 1 (50)	>20 : 1 (>95)	
C ₃ H ₇	CH(CH ₃) ₂	2 : 1 (66)	>20 : 1 (>95)	
C ₅ H ₁₁	CH ₃	1 : 1 (50)	>20 : 1 (>95)	>20 : 1 (>95)
C ₅ H ₁₁	C ₂ H ₅	1 : 2 (34)	>20 : 1 (>95)	>20 : 1 (>95)
C ₃ H ₇	C ₇ H ₁₅	1 : 2 (34)	4.5 : 1 (82)	>20 : 1 (>95)
C ₁₀ H ₂₁	CH ₃	1 : 1 (50)	>20 : 1 (>95)	
C ₅ H ₁₁	C ₉ H ₁₉	1 : 2 (34)	2 : 1 (66)	
C ₆ H ₅	C ₂ H ₅	1 : 3 (25)	4.5 : 1 (82)	3.5 : 1 (78)

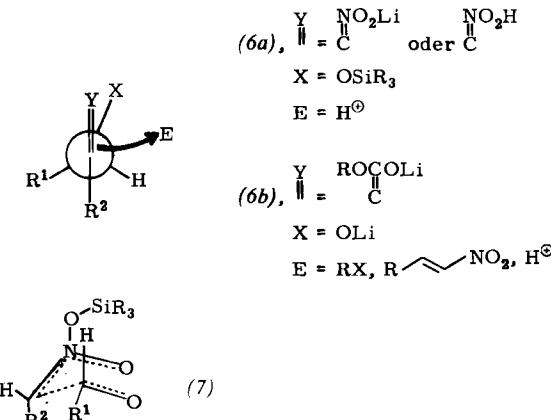
Als Beitrag zur diastereoselektiven Synthese offenkettiger Verbindungen^[4] berichten wir hier über einen einfachen Trick, mit dem man die TBDMS-geschützten Nitroalkohole (2) mit teilweise über 97% Gehalt an einem Diastereomer – und zwar B –, herstellen kann. Hierzu wird (2) als A/B-Gemisch (siehe Tabelle 1, Spalte 3) bei Trockeneistemperatur in Tetrahydrofuran (THF) mit Lithium-diisopropylamid zum Enantiomerenpaar (4) deprotoniert und die entstandene Lösung bei der tiefen Temperatur^[5] mit Eisessig versetzt (1:1-Gemisch mit THF, fünffacher Säureüberschuss). Unter Rückgewinnung von ca. 80% (2) isoliert man ein Produkt, welches das vorher im Unterschuß vorhandene B im Überschuß enthält (siehe Tabelle 1, Spalte 4; Ausnahme: R¹ = C₃H₇, R² = CH(CH₃)₂). Die zur diastereoselektiven Protonierung benötigten Lösungen von *aci*-Nitrosalzen (4) silylierter Nitroalkohole entstehen auch bei der Silylierung von Primäraddukten^[6] aus doppelt deprotonierten Nitroalkanen^[7] und Aldehyden mit TBDMSCl (siehe Weg (b)).

Wir fanden jetzt, daß auch die C—C-verknüpfende, direkte Synthese von Silylnitroalkoholen (2), d. h. die fluoridkatalysierte Addition von silylierten *aci*-Nitro-Derivaten (3) an Aldehyde nach Weg (c)^[1c], diastereoselektiv durchgeführt werden kann: Die nach dieser neuen Variante der Henry-Re-

aktion^[1c] synthetisierten Verbindungen (2) – mit Ausnahme des Benzaldehyd-Adduktes – sind praktisch reine Diastereomere vom Typ B (siehe Tabelle 1, Spalte 5), wie der Vergleich ihrer ¹H-NMR-Spektren mit denen der durch Protonierung von (4) erhaltenen Verbindungen zeigt.

Eine vorläufige Konfigurationszuordnung von A und B wurde folgendermaßen getroffen: Katalytische Hydrierung der Nitrogruppe über sorgfältig neutral gewaschenem Raney-Nickel und Entsilylierung (Bu₄NF/THF)^[9b] ergab – ohne Verlust an Diastereomerenreinheit – Aminoalkohole (5), deren *erythro*-Form nach Literaturangaben^[8] im ¹H-NMR-Spektrum die kleinere (3–4 Hz) und deren *threo*-Form die größere (ca. 6 Hz) vicinale [CH(NH₂)—CH(OH)]-Kopplung aufweisen sollte. Danach müßte B die *erythro*-Verbindung sein.

Über die Gründe für die Diastereoselektivität der Protonierung von (4) möchten wir hier nicht spekulieren^[9]; man kann das Ergebnis formal mit demselben Bild (6) beschreiben wie die Umsetzungen doppelt deprotonierter β -Hydroxyester^[10] [vgl. (6a) mit (6b)].



Für die bevorzugte Bildung eines Diastereomers bei der Silylnitroaldolreaktion [Weg (c)] kommen mechanistische Vorstellungen in Anlehnung an entsprechende Vorschläge für die normale Aldolreaktion^[4,11] in Frage [siehe Formel (7)].

Die beschriebenen Befunde zeigen erstmalig, daß β -Nitroalkohol-Derivate diastereoselektiv hergestellt werden können; außerdem werden β -Aminoalkohole (5) zugänglich, die durch Öffnung von Epoxiden mit NH₃ oder durch HO/H₂N-Addition an Alkene (Oxyaminierung)^[12] nicht regioselektiv erhalten werden können.

Eingegangen am 1. September,
ergänzt am 6. November 1980 [Z 739]

- [1] a) L. Henry, C. R. Acad. Sci. 120, 1265 (1895); Übersicht über die Nitroaldolreaktion: Houben-Weyl-Müller: Methoden der Organischen Chemie, Bd. 10/1. Thieme, Stuttgart 1971, S. 246 ff.; b) Übersicht über Nitroalkane in der Organischen Synthese: D. Seebach, E. W. Colvin, F. Lehr, Th. Weller, Chimia 33, 1 (1979); c) E. W. Colvin, D. Seebach, J. Chem. Soc. Chem. Commun. 1978, 689; E. W. Colvin, A. K. Beck, B. Bastani, D. Seebach, Y. Kai, J. D. Dunitz, Helv. Chim. Acta 63, 697 (1980).
- [2] Siehe z. B. V. Ehrig, D. Seebach, Chem. Ber. 108, 1961 (1975); D. Seebach, M. S. Hoekstra, G. Protschuk, Angew. Chem. 89, 334 (1977); Angew. Chem. Int. Ed. Engl. 16, 321 (1977); Th. Weller, D. Seebach, R. E. Davis, B. B. Laird, Helv. Chim. Acta, im Druck.
- [3] a) G. Stork, P. F. Hudrik, J. Am. Chem. Soc. 90, 4462 (1968); b) E. J. Corey, A. Venkateswarlu, ibid. 94, 6190 (1972); H. Gerlach, K. Oertle, A. Thalmann, Helv. Chim. Acta 60, 2860 (1977).
- [4] Übersicht: P. A. Bartlett, Tetrahedron 36, 3 (1980), zit. Lit.
- [5] Innentemperatur, um schnelle Zugabe der Säure zu ermöglichen, wurde in einem Bad von –90 bis –100 °C gearbeitet.
- [6] In gewissen Fällen gelingt es, den Anteil von A in (1) durch Protonierung von doppelt deprotonierten Nitroalkoholen, R¹—CH(OLi)C(NO₂Li)R² [7], zu erhöhen.
- [7] D. Seebach, F. Lehr, Helv. Chim. Acta 62, 2239 (1979); F. Lehr, J. Gonnermann, D. Seebach, ibid. 62, 2258 (1979).
- [8] B. Renger, D. Seebach, Chem. Ber. 110, 2334 (1977), zit. Lit.

- [9] Vgl. die diastereoselektive Protonierung bei der Wittig-Reaktion: *E. J. Corey, H. Yamamoto*, J. Am. Chem. Soc. 92, 226 (1970); *M. Schlosser, K. F. Christmann*, Justus Liebigs Ann. Chem. 708, 1 (1967); *M. Schlosser, K. F. Christmann, A. Piskala, D. Coffinet*, Synthesis 1971, 29; sowie enantioselektive Protonierungen von Enaminen: *H. Matsushita, M. Noguchi, M. Saburi, S. Yoshikawa*, Bull. Chem. Soc. Jpn. 48, 3715 (1975); *H. Matsushita, Y. Tsujino, M. Noguchi, S. Yoshikawa*, ibid. 49, 3629 (1976); *H. Matsushita, Y. Tsujino, M. Noguchi, M. Saburi, S. Yoshikawa*, ibid. 51, 862 (1978); *L. Duhamel, J.-C. Plaquevent*, Tetrahedron Lett. 1977, 2285; *J. Am. Chem. Soc.* 100, 7415 (1978); *Tetrahedron Lett.* 1980, 2521.
[10] *Th. Weller, M. Züger, D. Seebach*, Helv. Chim. Acta 63, 2005 (1980), zit. Lit.
[11] *J. Mulzer, G. Brüntrup, J. Finke, M. Zippel*, J. Am. Chem. Soc. 101, 7723 (1979).
[12] *J.-E. Bäckvall, K. Oshima, R. E. Palermo, K. B. Sharpless*, J. Org. Chem. 44, 1953 (1979), zit. Lit.

NEUE BÜCHER

Handbuch Festkörperanalyse mit Elektronen, Ionen und Röntgenstrahlen. Herausgegeben von *O. Brümmer, J. Heydenreich, K. H. Krebs* und *H. G. Schneider*. Vieweg, Braunschweig 1980, 432 S., geb. DM 86.00.

Unter diesem anspruchsvollen Titel verbirgt sich eine Sammlung von 20 Kapiteln über Festkörper- und Oberflächenanalyseverfahren. Wegen des begrenzten Raumes kann es sich dabei notwendigerweise nur um kurze Einführungen handeln, die jedoch durch umfassende Literaturangaben (bis etwa 1977) genügend Hinweise auf weiterführendes Schrifttum liefern. Der Aufbau der Kapitel ist (in Anbetracht von insgesamt ca. 30 Autoren) erfreulich einheitlich und gliedert sich jeweils in: Grundprinzip – Theoretische Grundlagen – Experimentelle Technik – Anwendungen – Zusammenfassung.

Nach einer längeren Einführung durch die Herausgeber, die vor allem die Hauptanwendungsbiete und die gegenseitigen Beziehungen zwischen den Verfahren umreißt, werden im einzelnen behandelt: 1. Röntgendiffraktometrie (*P. Klimanek*), 2. Röntgentopographie (*H. R. Höche* und *O. Brümmer*), 3. Röntgenfluoreszenzanalyse (*G. Försterling*), 4. Elektronenstrahl-Mikroanalyse (*W. Beier, A. Röder* und *O. Brümmer*), 5. Hochauflösende Röntgenspektroskopie (*G. Dräger*), 6. Festkörperanalyse mittels ioneninduzierter Röntgenstrahlung (*K. Hohmuth* und *W. Rudolph*), 7. Beugung schneller Elektronen (HEED) (*J. Brückner*), 8. Beugung langsamer Elektronen (LEED) (*J. Klöber* und *H. A. Schneider*), 9. Durchstrahlungs-Elektronenmikroskopie (*J. Heydenreich*), 10. Oberflächen-Elektronenmikroskopie (*J. Heydenreich* und *H. Johansen*), 11. Feldemissionsmikroskopie (*Ch. Edelmann*), 12. Energieverlust-Elektronenspektroskopie (*K. Breuer* und *H. Zschelle*), 13. Auger-Elektronenspektroskopie (*M. Klaua* und *G. Oertel*), 14. Photoelektronenspektroskopie (*U. Berg*), 15. Ioneninduzierte Elektronenemission (*K. H. Krebs*), 16. Ionenreflexionsspektroskopie (*H. Pech*), 17. Ionometrie (*G. Götz*), 18. Sekundärionen-Massenspektroskopie (*H. Düsterhoff*), 19. Elektronenstimulierte Ionendesorption

(*G. Dworzak*), sowie 20. Rechnersteuerung, Datenerfassung und Auswertung (*H. Mai*).

Das Buch wendet sich nicht an Spezialisten. Manche wichtigen neueren Entwicklungen (z. B. die Anwendung der Synchrotron-Strahlung) werden nicht erfaßt. Jedoch werden gut lesbare Einführungen gegeben und vor allem die Anwendungsbiete aufgezeigt. Durch die sonst nirgends in diesem Umfang erfaßten analytischen Methoden wird sicherlich eine Lücke gefüllt, so daß das Werk jeder Bibliothek zur Anschaffung empfohlen werden kann.

Gerhard Ertl [NB 527]

Neuerscheinungen

Die im folgenden angezeigten Bücher sind der Redaktion zugesandt worden. Nur für einen Teil dieser Werke können Rezensionen erscheinen, da die Seitenzahl, die für den Abdruck von Buchbesprechungen zur Verfügung steht, begrenzt ist. Alle aufgeführten Werke können über die Buchhandlung Chemie, Boschstraße 12, D-6940 Weinheim, bezogen werden.

Biologie. Lehrbuch zum Gegenstandskatalog. Von *R. Blaich*. edition medizin im Verlag Chemie, Weinheim 1980. V, 166 S., geb. DM 17.00. – ISBN 3-527-15027-7

Spectral and Chemical Characterization of Organic Compounds. Von *W. J. Cridle* und *G. P. Ellis*. John Wiley & Sons, New York 1980. XI, 115 S., kartoniert £ 4.50. – ISBN 0-471-27812-2

Optimierungsmethoden in der Wirkstoffforschung – Quantitative Wirkungs-Analyse. Von *R. Franke*. Akademie-Verlag, Berlin 1980. XVI, 454 S., geb. ca. DM 50.00

Angewandte Chemie. Fortsetzung der Zeitschrift „Die Chemie“

Die Wiedergabe von Gebrauchsnamen, Handelsnamen, Warenbezeichnungen und dgl. in dieser Zeitschrift berechtigt nicht zu der Annahme, daß solche Namen ohne weiteres von jedermann benutzt werden dürfen. Vielmehr handelt es sich häufig um gesetzlich geschützte eingetragene Warenzeichen, auch wenn sie nicht eigens als solche gekennzeichnet sind.

Redaktion: Boschartstraße 12, D-6940 Weinheim; Telefon (06201) 14036, Telex 465516 vchwh .

© Verlag Chemie, GmbH, D-6940 Weinheim, 1981. Printed in the Federal Republic of Germany.

Verantwortlich für den wissenschaftlichen Inhalt: *O. Smrekar*, Weinheim.

Verlag Chemie, GmbH (Geschäftsführer Dr. Helmut Grünwald und Hans Schermer), Pappelallee 3, D-6940 Weinheim. Telefon (06201) 14031, Telex 465516 vchwh d. – Anzeigenleitung: *R. Roth*, verantwortlich für den Anzeigenteil: *H. Both*, Weinheim.

 Satz, Druck und Bindung: Zechnerische Buchdruckerei, Speyer/Rhein.

Die Auflage und die Verbreitung wird von der IVW kontrolliert.

Alle Rechte, insbesondere die der Übersetzung in fremde Sprachen, vorbehalten. Kein Teil dieser Zeitschrift darf ohne schriftliche Genehmigung des Verlages in irgendeiner Form – durch Photokopie, Mikrofilm oder irgendein anderes Verfahren – reproduziert oder in eine von Maschinen, insbe-

sondere von Datenverarbeitungsmaschinen verwendbare Sprache übertragen oder übersetzt werden. All rights reserved (including those of translation into foreign languages). No part of this issue may be reproduced in any form – by photoprint, microfilm, or any other means – nor transmitted or translated into a machine language without the permission in writing of the publishers. – Von einzelnen Beiträgen oder Teilen von ihnen dürfen nur einzelne Vervielfältigungsstücke für den persönlichen und sonstigen eigenen Gebrauch hergestellt werden. Jede im Bereich eines gewerblichen Unternehmens hergestellte oder benutzte Kopie dient gewerblichen Zwecken gem. § 85 (2) UrhG und verpflichtet zur Gebührenzahlung an die VG WORT, Abteilung Wissenschaft, Goethestr. 49, 8000 München 2, von der die einzelnen Zahlungsmodalitäten zu erfragen sind. Die Weitergabe von Vervielfältigungen, gleichgültig zu welchem Zweck sie hergestellt werden, ist eine Urheberrechtsverletzung.

Valid for users in the USA: The appearance of the code at the bottom of the first page of an article in this journal (serial) indicates the copyright owner's consent that copies of the article may be made for personal or internal use, or for the personal or internal use of specific clients. This consent is given on the condition, however, that the copier pay the stated per-copy fee through the Copyright Clearance Center, Inc., for copying beyond that permitted by Sections 107 or 108 of the U.S. Copyright Law. This consent does not extend to other kinds of copying, such as a copying for general distribution, for advertising or promotional purposes, for creating new collective works, or for resale. For copying from back volumes of this journal see 'Permissions to Photo-Copy: Publisher's Fee List' of the CCC.