

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2014-122178

(P2014-122178A)

(43) 公開日 平成26年7月3日(2014.7.3)

(51) Int.Cl.
C07C 401/00 (2006.01)F1
C07C 401/00テーマコード (参考)
4H006

審査請求 未請求 請求項の数 12 O L 外国語出願 (全 41 頁)

(21) 出願番号 特願2012-278893 (P2012-278893)
(22) 出願日 平成24年12月21日 (2012.12.21)(71) 出願人 509087922
 Wisconsin アラムニ リサーチ フ
アンダーション
アメリカ合衆国 ウィスコンシン州 マデ
イソン ウォルナット ストリート 61
4 第13 フロアー
(74) 代理人 100102978
弁理士 清水 初志
(74) 代理人 100102118
弁理士 春名 雅夫
(74) 代理人 100160923
弁理士 山口 裕孝
(74) 代理人 100119507
弁理士 刑部 俊

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18, 19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロールの結晶化

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロールを結晶型で調製することによる精製方法を提供する。【解決手段】 酢酸エチルを含む溶媒に溶解させ、ヘキサンによる沈澱を用いて、1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロールを精製して結晶型の1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロールを得る。また、溶媒の拡散交換によるベンゼンからのヘキサンによる沈澱を用いた、X線実験用に許容される1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロール結晶を調製する。

【選択図】 なし

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

結晶型の1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロール。

【請求項 2】

空間群P2ならびに単位格子寸法 $a=4.8\text{ \AA}$ 、 $b=22.9\text{ \AA}$ 、 $c=36.1\text{ \AA}$ 、 $\alpha=90^\circ$ 、 $\beta=90^\circ$ および $\gamma=90^\circ$ によって規定される分子充填配置を有する1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロールの結晶型。

【請求項 3】

請求項2記載の分子充填配置によって規定される1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロールの三次元構造。

10

【請求項 4】

以下の段階を含む、1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロールの精製法：

(a) 精製する1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロールを含む生成物を、酢酸エチルを含む溶媒に溶解させる段階；

(b) 該溶媒および溶解した生成物にヘキサンを加えて混合物を形成させる段階；

(c) 該溶解した生成物を含む該混合物を、1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロール結晶の沈澱を形成させるのに十分な時間にわたり周囲温度未満まで冷却する段階；および

(d) 1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロール結晶を混合物から分離する段階。

20

【請求項 5】

分離する段階が、前記混合物および沈澱をろ過して結晶を得ることを含む、請求項4記載の方法。

【請求項 6】

段階(c)から回収した結晶を段階(a)の生成物として用いて、段階(a)～(c)を繰り返すことを含むさらなる段階(d)を含む、請求項4記載の方法。

【請求項 7】

酢酸エチルとヘキサンの比が体積比で約1:99である、請求項4記載の方法。

【請求項 8】

以下の段階を含む、1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロール結晶を溶媒の拡散交換によって調製する方法：

(a) 1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロールを含む生成物を、ベンゼンを含む第一の溶媒に溶解させる段階；

(b) ヘキサンを含む第二の溶媒を準備する段階；

(c) 溶解した生成物を含む該第一の溶媒と該第二の溶媒とを、1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロール結晶の沈澱を生成させるのに十分な時間にわたり一緒に拡散させる段階；および

(d) 1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロール結晶を回収する段階。

40

【請求項 9】

ベンゼンとヘキサンの比が体積比で約13:87である、請求項8記載の方法。

【請求項 10】

回収する段階が、ろ過して結晶を得ることを含む、請求項8記載の方法。

【請求項 11】

溶解した生成物を含む前記第一の溶媒と前記第二の溶媒とを一緒に拡散させる段階がアルゴンでパージした密閉系で行われる、請求項8記載の方法。

【請求項 12】

溶解した生成物を含む前記第一の溶媒と前記第二の溶媒とを一緒に拡散させる段階が室温で行われる、請求項8記載の方法。

50

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、有機化合物の精製、特に1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロール（本明細書において「051810」と呼ぶ）を結晶型で調製することによるその精製に関する。

【0002】

連邦政府により支援を受けた研究または開発に関する言明

本発明は、米国立衛生研究所により授与されたDK047814の下での政府支援により行った。政府は本発明において特定の権利を有する。

10

【背景技術】

【0003】

有機化合物、特に薬学的使用のために指定されたものの精製は、そのような化合物を合成する化学者にとって非常に重要である。化合物の調製は通常は多くの合成段階を必要とし、したがって最終生成物には手順の最後の合成段階由来の副生成物だけでなく、それよりも前の段階で生じた化合物が混入している可能性がある。クロマトグラフィ精製は非常に効率的であるが、比較的時間のかかる工程であり、そのような精製でさえ、通常は薬物として使用するのに十分純粋な化合物を提供することはない。

【0004】

1 α -ヒドロキシビタミンD化合物を合成するために用いる方法に依存して、最終生成物には異なる少量の望ましくない化合物が伴いうる。したがって、例えば、ビタミンDの5,6-トランス幾何異性体の直接C-1ヒドロキシル化と、続いてSeO₂/NMO酸化および光化学照射〔非特許文献1から3を参照されたい〕を行う場合、最終の1 α -ヒドロキシビタミンD生成物には1 β -ヒドロキシ-ならびに5,6-トランス異性体が混入しうる。方法がプレビタミンD化合物の4-フェニル-1,2,4-トリアゾリン-3,5-ジオン付加物のC-1アリル酸化と、続く修飾付加物の塩基性条件下での逆環化（cycloreversion）〔非特許文献4から7を参照されたい〕からなる場合、所望の1 α -ヒドロキシビタミンにはプレビタミン5(10),6,8-トリエンおよび1 β -ヒドロキシ異性体が混入しうるのが予想されうる。非常に広い範囲および多数の適用の最も有用なC-1ヒドロキシル化法の1つは、Paarenらにより詳しく述べられた実験的に単純な手順である〔非特許文献8および9を参照されたい〕。この方法は、ビタミンDトシレート

の緩衝化加溶媒分解から容易に得られる、3,5-シクロビタミンD誘導体のSeO₂/t-BuOOHによるアリル酸化と、続く所望の1 α -ヒドロキシ化合物への酸触媒逆環化からなる。この合成経路を考慮に入れると、最終生成物には1 α -ヒドロキシエピマー、5,6-トランス異性体およびプレビタミンD型が混入しうると考えるのが妥当である。1 α -ヒドロキシビタミンD₄は、ビタミンD₂またはエルゴステロールから合成された1 α -ヒドロキシビタミンD化合物において見られるもう一つの望ましくない混入物である。1 α -ヒドロキシビタミンD₄はビタミンD₄のC-1酸化の結果得られ、ビタミンD₄は市販のエルゴステロール材料の混入由来である。典型的に、最終生成物は最大約1.5重量%の1 α -ヒドロキシビタミンD₄を含みうる。したがって、最終生成物中の1 α -ヒドロキシビタミンD₄の量を約0.1~0.2%未満にまで除去または実質的に低減する精製技術が非常に望ましいであろう。

20

30

40

【0005】

ビタミンD共役トリエン系は熱および光に感受性であるだけでなく、酸化も受けやすく、非常に極性が高い化合物の複雑な混合物を生じる。酸化は通常は、ビタミンD化合物が長期間保存された場合に起こる。ビタミンD化合物の部分的分解を引き起こしうる他の種類のプロセスは、いくつかの水脱離反応からなり；それらの駆動力はヒドロキシ基のアリル（1 α -）およびホモアリル（3 β -）位である。そのような前述の酸化および脱離生成物の存在は、薄層クロマトグラフィによって容易に検出することができる。

【0006】

通常は、すべての1 α -ヒドロキシル化手順は少なくとも1つのクロマトグラフィ精製を必要とする。しかし、クロマトグラフィで精製した1 α -ヒドロキシビタミンD化合物であ

50

っても、一貫した分光学的データを示し、均一性を示唆してはいるが、経口、非経口または経皮投与しうる治療薬に対して要求される純度基準を満たしていない。したがって、1 α -ヒドロキシ化ビタミンD化合物051810の精製に適した方法が必要であることは明らかである。

【先行技術文献】

【非特許文献】

【0007】

【非特許文献1】Andrews et al., J. Org. Chem. 51, 1635 (1986)

【非特許文献2】Calverley et al., Tetrahedron 43, 4609 (1987)

【非特許文献3】Choudry et al, J. Org. Chem. 58, 1496 (1993)

10

【非特許文献4】Nevinckx et al., Tetrahedron 47, 9419 (1991)

【非特許文献5】Vanmaele et al, Tetrahedron 41, 141 (1985)

【非特許文献6】Vanmaele et al, Tetrahedron 40, 1179 (1994)

【非特許文献7】Vanmaele et al., Tetrahedron Lett. 23, 995 (1982)

【非特許文献8】Paaren et al., J. Org. Chem. 45, 3253 (1980)

【非特許文献9】Paaren et al., Proc. Natl. Acad. Sci U.S.A. 75, 2080 (1978)

【発明の概要】

【0008】

本発明は、結晶化により051810を精製して、051810を結晶型で得る方法に関する。溶媒は結晶化工程において重要な役割を果たし、典型的には個々の液体物質または異なる液体の適切な混合物である。051810を結晶化するために、最も適した溶媒および/または溶媒系は以下の因子によって特徴づけられる：

20

(1) 低い毒性；

(2) 低い沸点；

(3) 温度に関する溶解性の顕著な依存性（満足な結晶化収率を得るために必須の条件）；および

(4) 比較的低い費用。

【0009】

興味深いことに、結晶化を目的として非常に頻繁に用いられるヘキサンは、051810の結晶化のための単独の溶媒としてはあまり適切ではないことが判明した。しかし、酢酸エチルおよびヘキサンの混合物は051810の結晶化のために最も有用であることが判明した。特に、約1体積%の酢酸エチルおよび約99体積%のヘキサンの混合物は良好に機能することが明らかにされた。酢酸エチル/ヘキサン溶媒混合物は、蒸発または他の周知の方法によって除去することも容易であった。すべての場合に、結晶化工程は容易かつ効率的に起こり；沈澱した結晶はそれらをろ過または他の手段で確実に回収するのに十分大きかった。

30

【0010】

したがって、1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロールが結晶型で得られる。1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロールの結晶型および三次元構造は、空間群P2ならびに単位格子寸法 $a=4.8\text{ \AA}$ 、 $b=2.9\text{ \AA}$ 、 $c=36.1\text{ \AA}$ 、 $\alpha=90^\circ$ 、 $\beta=90^\circ$ および $\gamma=90^\circ$ によって規定される分子充填配置を有する。

40

【0011】

1つの態様において、以下の段階を含む、1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロールの精製法を記載する：

(a) 精製する1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロールを含む生成物を、酢酸エチルを含む溶媒に溶解させる段階；

(b) 該溶媒および溶解した生成物にヘキサンを加えて混合物を形成させる段階；

(c) 該溶解した生成物を含む該混合物を、1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロール結晶の沈澱を形成させるのに十分な時間にわたり周囲温度未満まで冷却する段階；および

50

(d) 1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロール結晶を混合物から分離する段階。

【0012】

もう1つの態様において、以下の段階を含む、1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロール結晶を溶媒の拡散交換によって調製する方法を記載する：

(a) 1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロールを含む生成物を、ベンゼンを含む第一の溶媒に溶解させる段階；

(b) ヘキサンを含む第二の溶媒を準備する段階；

(c) 溶解した生成物を含む該第一の溶媒と該第二の溶媒とを、1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロール結晶の沈澱を生成させるのに十分な時間にわたり一緒に拡散させる段階；および

(d) 1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロール結晶を回収する段階。

【0013】

より具体的には、本発明は下記を提供する：

[1] 結晶型の1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロール；

[2] 空間群P2ならびに単位格子寸法 $a=4.8\text{ \AA}$ 、 $b=22.9\text{ \AA}$ 、 $c=36.1\text{ \AA}$ 、 $\alpha=90^\circ$ 、 $\beta=90^\circ$ および $\gamma=90^\circ$ によって規定される分子充填配置を有する1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロールの結晶型；

[3] [2]の分子充填配置によって規定される1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロールの三次元構造；

[4] 以下の段階を含む、1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロールの精製法：

(a) 精製する1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロールを含む生成物を、酢酸エチルを含む溶媒に溶解させる段階；

(b) 該溶媒および溶解した生成物にヘキサンを加えて混合物を形成させる段階；

(c) 該溶解した生成物を含む該混合物を、1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロール結晶の沈澱を形成させるのに十分な時間にわたり周囲温度未満まで冷却する段階；および

(d) 1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロール結晶を混合物から分離する段階；

[5] 分離する段階が、前記混合物および沈澱をろ過して結晶を得ることを含む、[4]の方法；

[6] 段階(c)から回収した結晶を段階(a)の生成物として用いて、段階(a)～(c)を繰り返すことを含むさらなる段階(d)を含む、[4]の方法；

[7] 酢酸エチルとヘキサンとの比が体積比で約1:99である、[4]の方法；

[8] 以下の段階を含む、1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロール結晶を溶媒の拡散交換によって調製する方法：

(a) 1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロールを含む生成物を、ベンゼンを含む第一の溶媒に溶解させる段階；

(b) ヘキサンを含む第二の溶媒を準備する段階；

(c) 溶解した生成物を含む該第一の溶媒と該第二の溶媒とを、1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロール結晶の沈澱を生成させるのに十分な時間にわたり一緒に拡散させる段階；および

(d) 1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロール結晶を回収する段階；

[9] ベンゼンとヘキサンとの比が体積比で約13:87である、[8]の方法；

[10] 回収する段階が、ろ過して結晶を得ることを含む、[8]の方法；

10

20

30

40

50

〔11〕溶解した生成物を含む前記第一の溶媒と前記第二の溶媒とを一緒に拡散させる段階がアルゴンでパージした密閉系で行われる、[8]の方法；ならびに

〔12〕溶解した生成物を含む前記第一の溶媒と前記第二の溶媒とを一緒に拡散させる段階が室温で行われる、[8]の方法。

【図面の簡単な説明】

【0014】

【図1】本明細書において発見し、明示する、原子の位置パラメーターによって規定される、051810の第一の結晶学的不斉分子の三次元構造の例示であり；

【図2a】ベンゼン分子非存在下、本明細書において発見し、明示する、原子の位置パラメーターによって規定される、051810の第二の結晶学的不斉分子の三次元構造の例示であり；

【図2b】ベンゼン分子存在下、本明細書において発見し、明示する、原子の位置パラメーターによって規定される、051810の第二の不斉分子の三次元構造の例示であり；

【図3】051810の全非対称単位の球棒表示の例示である。

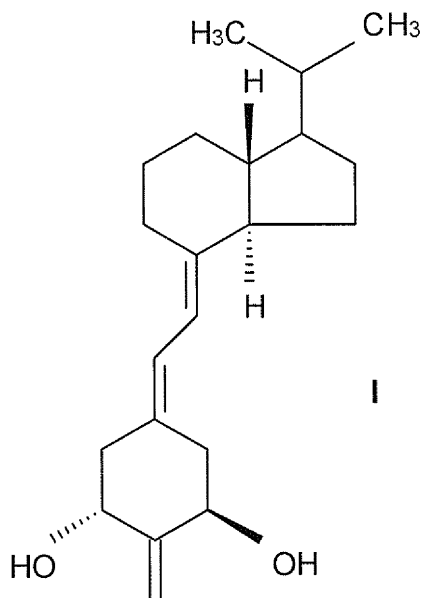
【発明を実施するための形態】

【0015】

発明の詳細な説明

本発明は、以下に示す式Iによって特徴づけられる、薬理的に重要な化合物、1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロール（051810）を提供する。

【化1】



【0016】

本発明は、051810の精製の有用な方法も提供する。精製技術は、精製する051810材料を溶媒として酢酸エチルを用いて溶解し、さらにヘキサンにより沈澱させる、結晶化手順を用いることにより、051810生成物を結晶型で得ることを含む。好ましくは、酢酸エチルとヘキサンの比は体積比で約1：99である。その後、溶媒を、減圧下、もしくは減圧をかけない、または周知の他の手段による蒸発によって除去することができ、あるいは得られた結晶を母液からろ過してもよい。この技術は、その任意の公知の合成から得、様々な濃度、すなわち、マイクログラム量からキログラム量の051810を含む、広範囲の最終生成物を精製するために用いることができる。当業者には周知であるとおり、用いる溶媒の量は最低限にする、および/または精製する05181の量に応じて調節するべきである。

【0017】

本発明の結晶化手順の有用性および利点を、以下の具体的実施例1に示す。結晶化の後、沈澱した材料を顕微鏡下で観察して、その結晶型を確認した。結晶の収率は比較的高く

、得られた結晶は140～145℃の比較的明確な融点を示した。

【0018】

合成051810生成物の記載した結晶化工程は、有用な精製法であり、これは合成経路由来のほとんどの副生成物を除去することができる。そのような不純物は、出発原材料の混入の結果である。結晶化工程は容易かつ効率的に起こり；沈澱した結晶はそれらをろ過または他の手段で確実に回収するのに十分大きかった。

【実施例】

【0019】

1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロール (051810) の結晶化

実施例1

酢酸エチル/ヘキサンからの結晶化

あらかじめ精製した（米国特許第7,238,681号を参照されたい）粗製1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロール（1.25g）を酢酸エチル（3ml）に室温で溶解し、ヘキサン（300ml）を激しく振盪している溶液に加えた。混合物を冷蔵庫（4℃）に終夜維持し、得られた結晶をろ過し、冷却した（4℃）ヘキサン（30ml）で1回洗浄し、減圧下で3時間乾燥して、純粋な生成物（1.10g）を得た。

【0020】

X線実験用に許容される結晶を得るために、1 α -ヒドロキシ-2-メチレン-18,19-ジノル-ホモプレグナカルシフェロール（12mg）を容器の内側の管に入れ、ベンゼン（300 μ l）に溶解した。容器の外側の管にヘキサン（2ml）を加え、ベンゼンとヘキサンの体積比約13：87を得、系全体を注意深くアルゴンでパージし、次いで密閉系として維持した。容器を室温で4日間きつく密閉を維持した。結晶を2つの溶媒の拡散交換を用いて成長させた。

【0021】

大きさ0.73×0.08×0.02mmの無色棒状結晶を構造分析のために選択した。強度データを、PROTEUMソフトウェアスイートで制御するBruker AXS Platinum 135 CCD検出器（Bruker AXS Inc., Madison, WI）を用いて収集した。x線源は、Montel光学部品を備えたRigaku RU200 x線発生装置を50kVおよび90mAで操作しての、CuK α 照射（1.54178 Å）であった。x線データを、SAINTバージョン7.06A（Bruker AXS Inc.）で処理し、SADABSバージョン2005/1（Bruker AXS Inc.）で内部調整した。試料を真空グリースを用いてガラスファイバー上に固定し、100Kに冷却した。強度データを、それぞれ60～120秒/フレームで1°の一連のファイおよびオメガ振動フレームとして測定した。検出器は1024×1024モードで操作し、試料から5.0cmに設置した。格子パラメーターは、3.0<シータ<50.8°の範囲の9999ピークの非線形最小二乗法によるフィッティングからもとめた。データを併せてR(int)=0.0884の4693の独立したデータ群を生成した。

【0022】

斜方晶系空間群P2(1)2(1)2(1)を、消滅側（systematic absences）および統計学的検定によって決定し、その後の精密化によって検証した。構造を直接法によって解明し、F²に対する完全行列最小二乗法によって精密化した、(a) G.M. Sheldrick (1994), SHELXT L Version 5 Reference Manual, Bruker AXS Inc.; (b) International Tables for Crystallography, Vol. C, Kluwer: Boston (1995)。非対称単位は2分子の051810およびベンゼン分子の2分子からなる。分子「A」を図1に示し、熱楕円体は40%確率レベルで描いている。格子充填に基づけば、ベンゼン分子はすべて占有された状態で存在し得ず、その占有率の精密化によって約0.5の値を得た。ベンゼン分子の存在は、分子「B」の一部における無秩序を引き起こした。ベンゼンの占有率とは無関係の2つの無秩序立体配置の占有率の精密化も、それぞれ約0.5の値で収束した。図2aは、分子Bをベンゼン分子非存在下でのその立体配置で示し、図2bは、ベンゼン分子存在下でのその立体配置で示し；いずれの図も40%確率レベルでの熱楕円体で描いている。図3は、全非対称単位の球棒表示を示し、中空の結合はベンゼン分子存在下での立体配置を示す。水素原子の位置を、理想化した幾何学のライディングモデルによって精密化した。非水素原子は、異方性変位パラメータ

10

20

30

40

50

ーで精密化した。ベンゼン分子は理想化した幾何学で精密化した。全559パラメーターを26の制約および4693のデータに対して精密化し、 $w=1/[s^2(F^2)+(0.1719P)^2]$ の重量について $wR2=0.2524$ および $S=0.951$ を得、ここで $P=[F_o^2+2F_c^2]/3$ であった。6781の観察されたデータについて最終 $R(F)$ は0.0910であった。最大シフト/s.u.は最終精密化周期において0.001であり、最終差マップの最大および最小はそれぞれ0.366および $-0.305\text{e}/\text{\AA}^3$ であった。絶対構造はフラックパラメーターの精密化によって決定した、H.D. Flack, Acta Cryst. A, vol. 39, 876-881 (1983)。

【0 0 2 3】

以下の物理的データおよび本明細書において記載し、計算した位置パラメーターによって規定される、051810の三次元構造を図1、2a、2bおよび3に例示する。

10

【0 0 2 4】

【表 1】

051810の結晶データおよび構造精密化

同定コード	051810
実験式	C45 H67 O4
式量	671.99
温度	100(1) K
波長	1.54178 Å
結晶系	斜方晶系
空間群	P2(1)2(1)2(1)
単位格子定数	$a = 4.8020(10)\text{\AA}$ $\alpha = 90^\circ$ $b = 22.940(5)\text{\AA}$ $\beta = 90^\circ$ $c = 36.124(7)\text{\AA}$ $\gamma = 90^\circ$
体積	$3979.3(14)\text{\AA}^3$
Z	4
密度(計算値)	1.122 Mg/m ³
吸収係数	0.533 mm ⁻¹
F(000)	1476
結晶	0.73 x 0.08 x 0.02 mm
データ収集のためのシート範囲	2.28 ~ 54.17°
限界指数	$-4 < h < 4, -24 < k < 23, -37 < l < 37$
全反射	12592
独立反射	4693 [$R(\text{int}) = 0.0884$]
シート=54.17° に対する完全性	98.2 %
精密化法	F^2 に対する完全行列最小二乗法
データ/制約/パラメーター	4693 / 26 / 559
F^2 に対する適合度	0.951
最終R指数 [$I > 2\sigma(I)$]	$R1 = 0.0910, wR2 = 0.2214$
R指数(全データ)	$R1 = 0.1268, wR2 = 0.2524$
消衰係数	0.0124(12)
最大差ピークおよびホール	0.366 および $-0.305\text{ e}/\text{\AA}^3$
融点	140-145°C

20

30

40

【0 0 2 5】

【表 2】

051810の原子座標($\times 10^4$)および等価等方性変位パラメーター($\text{\AA}^2 \times 10^3$)。

U(eq)は直交する U_{ij} テンソルのトレースの3分の1と規定する。

	X	Y	Z	U (eq)	
O (1A)	-322 (12)	7615 (2)	6913 (2)	59 (2)	
O (3A)	-2739 (11)	9404 (2)	7179 (1)	51 (1)	
C (10A)	-165 (18)	8424 (3)	6486 (2)	47 (2)	
C (1A)	-994 (17)	8232 (3)	6868 (2)	46 (2)	10
C (3A)	148 (16)	9249 (3)	7108 (2)	49 (2)	
C (14A)	-7331 (19)	8940 (3)	5377 (2)	48 (2)	
C (4A)	864 (18)	9437 (3)	6719 (2)	49 (2)	
C (13A)	-6378 (17)	9119 (3)	4990 (2)	42 (2)	
C (7A)	-4130 (18)	9025 (3)	5916 (2)	50 (2)	
C (17A)	-7691 (17)	8673 (3)	4726 (2)	47 (2)	
C (2A)	472 (16)	8595 (3)	7156 (2)	47 (2)	
C (15A)	-7129 (18)	8276 (3)	5360 (2)	49 (2)	
C (8A)	-5795 (16)	9274 (3)	5667 (2)	43 (2)	
C (9A)	-6387 (19)	9924 (3)	5624 (2)	52 (2)	
C (12A)	-7120 (18)	9770 (3)	4931 (2)	46 (2)	20
C (5A)	-649 (16)	9072 (3)	6439 (2)	43 (2)	
C (16A)	-8423 (18)	8158 (3)	4986 (2)	50 (2)	
C (21A)	-4792 (18)	9008 (3)	4177 (2)	48 (2)	
C (20A)	-5793 (17)	8486 (3)	4408 (2)	45 (2)	
C (11A)	-5708 (19)	10137 (3)	5234 (2)	51 (2)	
C (6A)	-2416 (17)	9326 (3)	6193 (2)	47 (2)	
C (22A)	-7262 (18)	8050 (3)	4144 (2)	55 (2)	
C (2A')	1940 (20)	8381 (4)	7432 (2)	76 (3)	
O (3B)	-3150 (11)	10326 (2)	7677 (1)	48 (1)	
O (1B)	-4693 (10)	12069 (2)	8071 (1)	40 (1)	
C (1B)	-4362 (16)	11592 (3)	7816 (2)	39 (2)	
C (2B)	-6068 (16)	11074 (3)	7930 (2)	40 (2)	30
C (10B)	-5147 (19)	11778 (3)	7423 (2)	49 (2)	
C (3B)	-5950 (17)	10575 (3)	7667 (2)	46 (2)	
C (4B)	-6576 (18)	10759 (3)	7270 (2)	48 (2)	
C (6B)	-3204 (17)	11254 (3)	6861 (2)	51 (2)	
C (5B)	-4833 (17)	11275 (3)	7155 (2)	44 (2)	
C (7B)	-1376 (17)	11745 (4)	6734 (2)	58 (2)	
C (2B')	-7707 (19)	11071 (3)	8221 (2)	56 (2)	
C (8B)	259 (18)	11713 (5)	6435 (3)	75 (3)	
C (12B)	2040 (50)	12137 (10)	5703 (5)	105 (13)	
C (9B)	720 (60)	11337 (11)	6171 (5)	65 (7)	
C (14B)	1730 (40)	12297 (7)	6369 (5)	66 (5)	40
C (13B)	1580 (50)	12609 (9)	5997 (5)	86 (8)	
C (11B)	420 (50)	11584 (11)	5782 (5)	96 (11)	
C (15B)	1870 (60)	12851 (8)	6602 (7)	111 (14)	
C (17B)	3160 (40)	13190 (9)	5995 (8)	109 (12)	

C(16B)	3350(40)	13356(9)	6404(7)	101(9)
C(20B)	2050(50)	13662(10)	5735(7)	151(15)
C(22B)	3890(50)	14206(10)	5741(8)	185(18)
C(21B)	1610(120)	13442(14)	5339(8)	230(30)
C(12')	1350(40)	11726(7)	5609(6)	45(6)
C(9')	160(70)	11067(10)	6145(6)	46(8)
C(14')	2290(40)	12120(8)	6246(4)	45(8)
C(13')	1240(50)	12265(7)	5860(4)	36(6)
C(11')	-560(50)	11251(8)	5752(5)	39(6)
C(15')	2350(40)	12687(8)	6459(5)	33(5)
C(17')	2980(40)	12809(6)	5789(4)	38(5)
C(16')	3750(40)	13067(7)	6167(4)	35(6)
C(20')	1650(50)	13270(7)	5543(5)	72(8)
C(22')	3670(70)	13750(10)	5428(8)	78(9)
C(21')	80(60)	13041(10)	5206(6)	76(9)
C(1)	1350(20)	14678(5)	6378(3)	67(5)
C(2)	1060(20)	14340(5)	6695(4)	64(5)
C(3)	3410(30)	14137(4)	6879(2)	69(5)
C(4)	6050(20)	14270(4)	6746(3)	58(5)
C(5)	6340(20)	14608(4)	6429(3)	62(5)
C(6)	3990(30)	14811(4)	6245(3)	74(6)

10

20

【 0 0 2 6 】

【表 3】

051810の結合長[Å]

O(1A)-C(1A)	1.460(8)	
O(1A)-H(1AA)	0.8200	
O(3A)-C(3A)	1.454(9)	
O(3A)-H(3AA)	0.8200	
C(10A)-C(1A)	1.502(9)	
C(10A)-C(5A)	1.513(10)	
C(10A)-H(10A)	0.9700	10
C(10A)-H(10B)	0.9700	
C(1A)-C(2A)	1.508(11)	
C(1A)-H(1AB)	0.9800	
C(3A)-C(4A)	1.507(10)	
C(3A)-C(2A)	1.518(10)	
C(3A)-H(3AB)	0.9800	
C(14A)-C(8A)	1.492(10)	
C(14A)-C(13A)	1.527(10)	
C(14A)-C(15A)	1.529(9)	
C(14A)-H(14A)	0.9800	
C(4A)-C(5A)	1.501(10)	20
C(4A)-H(4AA)	0.9700	
C(4A)-H(4AB)	0.9700	
C(13A)-C(17A)	1.534(10)	
C(13A)-C(12A)	1.550(9)	
C(13A)-H(13A)	0.9800	
C(7A)-C(8A)	1.332(10)	
C(7A)-C(6A)	1.469(10)	
C(7A)-H(7AA)	0.9300	
C(17A)-C(20A)	1.529(10)	
C(17A)-C(16A)	1.548(10)	
C(17A)-H(17A)	0.9800	
C(2A)-C(2A')	1.314(11)	30
C(15A)-C(16A)	1.511(10)	
C(15A)-H(15A)	0.9700	
C(15A)-H(15B)	0.9700	
C(8A)-C(9A)	1.526(10)	
C(9A)-C(11A)	1.528(9)	
C(9A)-H(9AA)	0.9700	
C(9A)-H(9AB)	0.9700	
C(12A)-C(11A)	1.538(10)	
C(12A)-H(12A)	0.9700	
C(12A)-H(12B)	0.9700	
C(5A)-C(6A)	1.359(10)	40
C(16A)-H(16A)	0.9700	
C(16A)-H(16B)	0.9700	
C(21A)-C(20A)	1.536(10)	
C(21A)-H(21A)	0.9600	

C(21A)-H(21B)	0.9600	
C(21A)-H(21C)	0.9600	
C(20A)-C(22A)	1.552(10)	
C(20A)-H(20A)	0.9800	
C(11A)-H(11A)	0.9700	
C(11A)-H(11B)	0.9700	
C(6A)-H(6AA)	0.9300	
C(22A)-H(22A)	0.9600	
C(22A)-H(22B)	0.9600	
C(22A)-H(22C)	0.9600	
C(2A')-H(1A')	0.9300	10
C(2A')-H(2A')	0.9300	
O(3B)-C(3B)	1.461(10)	
O(3B)-H(3BA)	0.8200	
O(1B)-C(1B)	1.439(8)	
O(1B)-H(1BA)	0.8200	
C(1B)-C(2B)	1.501(10)	
C(1B)-C(10B)	1.532(9)	
C(1B)-H(1BB)	0.9800	
C(2B)-C(2B')	1.313(10)	
C(2B)-C(3B)	1.488(10)	
C(10B)-C(5B)	1.514(9)	20
C(10B)-H(10C)	0.9700	
C(10B)-H(10D)	0.9700	
C(3B)-C(4B)	1.526(7)	
C(3B)-H(3BB)	0.9800	
C(4B)-C(5B)	1.506(10)	
C(4B)-H(4BA)	0.9700	
C(4B)-H(4BB)	0.9700	
C(6B)-C(5B)	1.321(10)	
C(6B)-C(7B)	1.499(8)	
C(6B)-H(6BA)	0.9300	
C(7B)-C(8B)	1.338(12)	
C(7B)-H(7BA)	0.9300	30
C(2B')-H(1B')	0.9300	
C(2B')-H(2B')	0.9300	
C(8B)-C(9B)	1.50(2)	
C(8B)-C(14')	1.514(10)	
C(8B)-C(14B)	1.534(10)	
C(8B)-C(9')	1.52(2)	
C(12B)-C(11B)	1.516(10)	
C(12B)-C(13B)	1.534(10)	
C(12B)-H(12C)	0.9700	
C(12B)-H(12D)	0.9700	
C(9B)-C(11B)	1.522(10)	40
C(9B)-H(9BA)	0.9700	
C(9B)-H(9BB)	0.9700	
C(14B)-C(15B)	1.527(10)	

C(14B)-C(13B)	1.524(10)	
C(14B)-H(14B)	0.9800	
C(13B)-C(17B)	1.532(10)	
C(13B)-H(13B)	0.9800	
C(11B)-H(11C)	0.9700	
C(11B)-H(11D)	0.9700	
C(15B)-C(16B)	1.535(10)	
C(15B)-H(15C)	0.9700	
C(15B)-H(15D)	0.9700	
C(17B)-C(16B)	1.528(10)	
C(17B)-C(20B)	1.528(10)	10
C(17B)-H(17B)	0.9800	
C(16B)-H(16C)	0.9700	
C(16B)-H(16D)	0.9700	
C(20B)-C(22B)	1.528(10)	
C(20B)-C(21B)	1.532(11)	
C(20B)-H(20B)	0.9800	
C(22B)-H(22D)	0.9600	
C(22B)-H(22E)	0.9600	
C(22B)-H(22F)	0.9600	
C(21B)-H(21D)	0.9600	
C(21B)-H(21E)	0.9600	20
C(21B)-H(21F)	0.9600	
C(12')-C(11')	1.513(10)	
C(12')-C(13')	1.534(10)	
C(12')-H(12E)	0.9700	
C(12')-H(12F)	0.9700	
C(9')-C(11')	1.519(10)	
C(9')-H(9BC)	0.9700	
C(9')-H(9BD)	0.9700	
C(14')-C(15')	1.512(10)	
C(14')-C(13')	1.517(10)	
C(14')-H(14')	0.9800	
C(13')-C(17')	1.523(10)	30
C(13')-H(13')	0.9800	
C(11')-H(11E)	0.9700	
C(11')-H(11F)	0.9700	
C(15')-C(16')	1.524(10)	
C(15')-H(15E)	0.9700	
C(15')-H(15F)	0.9700	
C(17')-C(20')	1.523(10)	
C(17')-C(16')	1.533(10)	
C(17')-H(17')	0.9800	
C(16')-H(16E)	0.9700	
C(16')-H(16F)	0.9700	40
C(20')-C(21')	1.525(10)	
C(20')-C(22')	1.528(10)	
C(20')-H(20C)	0.9800	

C(22')-H(22G)	0.9600
C(22')-H(22H)	0.9600
C(22')-H(22I)	0.9600
C(21')-H(21G)	0.9600
C(21')-H(21H)	0.9600
C(21')-H(21I)	0.9600
C(1)-C(2)	1.3900
C(1)-C(6)	1.3900
C(1)-H(1A)	0.9300
C(2)-C(3)	1.3900
C(2)-H(2A)	0.9300
C(3)-C(4)	1.3900
C(3)-H(3A)	0.9300
C(4)-C(5)	1.3900
C(4)-H(4A)	0.9300
C(5)-C(6)	1.3900
C(5)-H(5A)	0.9300
C(6)-H(6A)	0.9300

10

【 0 0 2 7 】

【表 4】

051810の結合角[°]

C(1A)-O(1A)-H(1AA)	109.5	
C(3A)-O(3A)-H(3AA)	109.5	
C(1A)-C(10A)-C(5A)	110.6(6)	
C(1A)-C(10A)-H(10A)	109.7	
C(5A)-C(10A)-H(10A)	109.6	
C(1A)-C(10A)-H(10B)	109.4	10
C(5A)-C(10A)-H(10B)	109.4	
H(10A)-C(10A)-H(10B)	108.1	
O(1A)-C(1A)-C(10A)	109.1(6)	
O(1A)-C(1A)-C(2A)	110.9(6)	
C(10A)-C(1A)-C(2A)	110.4(6)	
O(1A)-C(1A)-H(1AB)	108.8	
C(10A)-C(1A)-H(1AB)	108.8	
C(2A)-C(1A)-H(1AB)	108.8	
O(3A)-C(3A)-C(4A)	108.2(6)	
O(3A)-C(3A)-C(2A)	108.6(6)	
C(4A)-C(3A)-C(2A)	111.5(6)	20
O(3A)-C(3A)-H(3AB)	109.5	
C(4A)-C(3A)-H(3AB)	109.5	
C(2A)-C(3A)-H(3AB)	109.5	
C(8A)-C(14A)-C(13A)	110.9(7)	
C(8A)-C(14A)-C(15A)	120.6(7)	
C(13A)-C(14A)-C(15A)	102.2(6)	
C(8A)-C(14A)-H(14A)	107.5	
C(13A)-C(14A)-H(14A)	107.5	
C(15A)-C(14A)-H(14A)	107.6	
C(5A)-C(4A)-C(3A)	111.0(6)	
C(5A)-C(4A)-H(4AA)	109.4	
C(3A)-C(4A)-H(4AA)	109.4	30
C(5A)-C(4A)-H(4AB)	109.4	
C(3A)-C(4A)-H(4AB)	109.5	
H(4AA)-C(4A)-H(4AB)	108.0	
C(14A)-C(13A)-C(17A)	105.5(6)	
C(14A)-C(13A)-C(12A)	108.4(6)	
C(17A)-C(13A)-C(12A)	117.6(6)	
C(14A)-C(13A)-H(13A)	108.4	
C(17A)-C(13A)-H(13A)	108.3	
C(12A)-C(13A)-H(13A)	108.4	
C(8A)-C(7A)-C(6A)	126.6(7)	
C(8A)-C(7A)-H(7AA)	116.8	
C(6A)-C(7A)-H(7AA)	116.6	40
C(20A)-C(17A)-C(13A)	114.2(7)	
C(20A)-C(17A)-C(16A)	112.1(6)	
C(13A)-C(17A)-C(16A)	103.1(5)	

C(20A)-C(17A)-H(17A)	109.1	
C(13A)-C(17A)-H(17A)	109.1	
C(16A)-C(17A)-H(17A)	109.1	
C(2A')-C(2A)-C(1A)	124.4(7)	
C(2A')-C(2A)-C(3A)	120.9(8)	
C(1A)-C(2A)-C(3A)	114.7(6)	
C(16A)-C(15A)-C(14A)	100.9(6)	
C(16A)-C(15A)-H(15A)	111.6	
C(14A)-C(15A)-H(15A)	111.6	
C(16A)-C(15A)-H(15B)	111.6	
C(14A)-C(15A)-H(15B)	111.5	10
H(15A)-C(15A)-H(15B)	109.4	
C(7A)-C(8A)-C(14A)	123.4(6)	
C(7A)-C(8A)-C(9A)	126.8(7)	
C(14A)-C(8A)-C(9A)	109.8(6)	
C(11A)-C(9A)-C(8A)	111.5(6)	
C(11A)-C(9A)-H(9AA)	109.3	
C(8A)-C(9A)-H(9AA)	109.4	
C(11A)-C(9A)-H(9AB)	109.3	
C(8A)-C(9A)-H(9AB)	109.4	
H(9AA)-C(9A)-H(9AB)	108.0	
C(11A)-C(12A)-C(13A)	109.2(6)	20
C(11A)-C(12A)-H(12A)	109.8	
C(13A)-C(12A)-H(12A)	109.8	
C(11A)-C(12A)-H(12B)	109.9	
C(13A)-C(12A)-H(12B)	109.8	
H(12A)-C(12A)-H(12B)	108.3	
C(6A)-C(5A)-C(4A)	120.2(6)	
C(6A)-C(5A)-C(10A)	126.2(7)	
C(4A)-C(5A)-C(10A)	113.4(6)	
C(15A)-C(16A)-C(17A)	108.1(6)	
C(15A)-C(16A)-H(16A)	110.1	
C(17A)-C(16A)-H(16A)	110.1	
C(15A)-C(16A)-H(16B)	110.0	30
C(17A)-C(16A)-H(16B)	110.1	
H(16A)-C(16A)-H(16B)	108.4	
C(20A)-C(21A)-H(21A)	109.6	
C(20A)-C(21A)-H(21B)	109.4	
H(21A)-C(21A)-H(21B)	109.5	
C(20A)-C(21A)-H(21C)	109.4	
H(21A)-C(21A)-H(21C)	109.5	
H(21B)-C(21A)-H(21C)	109.5	
C(17A)-C(20A)-C(21A)	112.2(6)	
C(17A)-C(20A)-C(22A)	111.9(7)	
C(21A)-C(20A)-C(22A)	108.1(6)	40
C(17A)-C(20A)-H(20A)	108.2	
C(21A)-C(20A)-H(20A)	108.2	
C(22A)-C(20A)-H(20A)	108.2	

C(9A)-C(11A)-C(12A)	112.8(7)	
C(9A)-C(11A)-H(11A)	109.0	
C(12A)-C(11A)-H(11A)	109.0	
C(9A)-C(11A)-H(11B)	109.1	
C(12A)-C(11A)-H(11B)	109.0	
H(11A)-C(11A)-H(11B)	107.8	
C(5A)-C(6A)-C(7A)	126.5(7)	
C(5A)-C(6A)-H(6AA)	116.8	
C(7A)-C(6A)-H(6AA)	116.7	
C(20A)-C(22A)-H(22A)	109.4	
C(20A)-C(22A)-H(22B)	109.5	10
H(22A)-C(22A)-H(22B)	109.5	
C(20A)-C(22A)-H(22C)	109.5	
H(22A)-C(22A)-H(22C)	109.5	
H(22B)-C(22A)-H(22C)	109.5	
C(2A)-C(2A')-H(1A')	120.0	
C(2A)-C(2A')-H(2A')	120.0	
H(1A')-C(2A')-H(2A')	120.0	
C(3B)-O(3B)-H(3BA)	109.4	
C(1B)-O(1B)-H(1BA)	109.4	
O(1B)-C(1B)-C(2B)	111.5(5)	
O(1B)-C(1B)-C(10B)	110.7(5)	
C(2B)-C(1B)-C(10B)	110.0(6)	20
O(1B)-C(1B)-H(1BB)	108.2	
C(2B)-C(1B)-H(1BB)	108.2	
C(10B)-C(1B)-H(1BB)	108.2	
C(2B')-C(2B)-C(3B)	122.1(7)	
C(2B')-C(2B)-C(1B)	123.4(7)	
C(3B)-C(2B)-C(1B)	114.4(6)	
C(5B)-C(10B)-C(1B)	110.8(6)	
C(5B)-C(10B)-H(10C)	109.6	
C(1B)-C(10B)-H(10C)	109.5	
C(5B)-C(10B)-H(10D)	109.4	
C(1B)-C(10B)-H(10D)	109.5	30
H(10C)-C(10B)-H(10D)	108.1	
O(3B)-C(3B)-C(2B)	108.7(6)	
O(3B)-C(3B)-C(4B)	108.2(6)	
C(2B)-C(3B)-C(4B)	112.4(6)	
O(3B)-C(3B)-H(3BB)	109.1	
C(2B)-C(3B)-H(3BB)	109.2	
C(4B)-C(3B)-H(3BB)	109.2	
C(5B)-C(4B)-C(3B)	111.5(6)	
C(5B)-C(4B)-H(4BA)	109.3	
C(3B)-C(4B)-H(4BA)	109.2	
C(5B)-C(4B)-H(4BB)	109.4	
C(3B)-C(4B)-H(4BB)	109.4	40
H(4BA)-C(4B)-H(4BB)	108.0	
C(5B)-C(6B)-C(7B)	124.5(7)	

C(5B)-C(6B)-H(6BA)	117.8	
C(7B)-C(6B)-H(6BA)	117.7	
C(6B)-C(5B)-C(4B)	121.5(6)	
C(6B)-C(5B)-C(10B)	126.9(7)	
C(4B)-C(5B)-C(10B)	111.6(6)	
C(8B)-C(7B)-C(6B)	123.3(8)	
C(8B)-C(7B)-H(7BA)	118.3	
C(6B)-C(7B)-H(7BA)	118.4	
C(2B)-C(2B')-H(1B')	120.1	
C(2B)-C(2B')-H(2B')	119.9	
H(1B')-C(2B')-H(2B')	120.0	10
C(9B)-C(8B)-C(7B)	136.7(13)	
C(9B)-C(8B)-C(14')	88.1(14)	
C(7B)-C(8B)-C(14')	135.1(12)	
C(9B)-C(8B)-C(14B)	112.6(15)	
C(7B)-C(8B)-C(14B)	110.4(11)	
C(14')-C(8B)-C(14B)	24.9(8)	
C(9B)-C(8B)-C(9')	16.9(16)	
C(7B)-C(8B)-C(9')	119.8(12)	
C(14')-C(8B)-C(9')	105.0(13)	
C(14B)-C(8B)-C(9')	129.4(13)	
C(11B)-C(12B)-C(13B)	112.7(18)	20
C(11B)-C(12B)-H(12C)	108.9	
C(13B)-C(12B)-H(12C)	108.6	
C(11B)-C(12B)-H(12D)	109.3	
C(13B)-C(12B)-H(12D)	109.5	
H(12C)-C(12B)-H(12D)	107.8	
C(8B)-C(9B)-C(11B)	114.4(19)	
C(8B)-C(9B)-H(9BA)	109.1	
C(11B)-C(9B)-H(9BA)	108.4	
C(8B)-C(9B)-H(9BB)	108.6	
C(11B)-C(9B)-H(9BB)	108.6	
H(9BA)-C(9B)-H(9BB)	107.6	
C(15B)-C(14B)-C(13B)	95.5(15)	30
C(15B)-C(14B)-C(8B)	131.5(13)	
C(13B)-C(14B)-C(8B)	121.8(14)	
C(15B)-C(14B)-H(14B)	100.6	
C(13B)-C(14B)-H(14B)	101.3	
C(8B)-C(14B)-H(14B)	101.0	
C(14B)-C(13B)-C(17B)	113.0(14)	
C(14B)-C(13B)-C(12B)	105.8(15)	
C(17B)-C(13B)-C(12B)	122.6(18)	
C(14B)-C(13B)-H(13B)	104.3	
C(17B)-C(13B)-H(13B)	104.4	
C(12B)-C(13B)-H(13B)	105.0	
C(12B)-C(11B)-C(9B)	115.9(19)	40
C(12B)-C(11B)-H(11C)	108.0	
C(9B)-C(11B)-H(11C)	108.5	

C(12B)-C(11B)-H(11D)	108.5	
C(9B)-C(11B)-H(11D)	108.3	
H(11C)-C(11B)-H(11D)	107.4	
C(14B)-C(15B)-C(16B)	113.1(17)	
C(14B)-C(15B)-H(15C)	109.4	
C(16B)-C(15B)-H(15C)	109.8	
C(14B)-C(15B)-H(15D)	107.9	
C(16B)-C(15B)-H(15D)	108.7	
H(15C)-C(15B)-H(15D)	107.6	
C(16B)-C(17B)-C(20B)	115.9(19)	
C(16B)-C(17B)-C(13B)	104.0(16)	10
C(20B)-C(17B)-C(13B)	116.6(16)	
C(16B)-C(17B)-H(17B)	106.2	
C(20B)-C(17B)-H(17B)	106.6	
C(13B)-C(17B)-H(17B)	106.7	
C(17B)-C(16B)-C(15B)	103.5(18)	
C(17B)-C(16B)-H(16C)	111.1	
C(15B)-C(16B)-H(16C)	110.8	
C(17B)-C(16B)-H(16D)	111.7	
C(15B)-C(16B)-H(16D)	110.5	
H(16C)-C(16B)-H(16D)	109.2	
C(22B)-C(20B)-C(17B)	111.7(17)	
C(22B)-C(20B)-C(21B)	111(2)	20
C(17B)-C(20B)-C(21B)	113(2)	
C(22B)-C(20B)-H(20B)	107.2	
C(17B)-C(20B)-H(20B)	107.2	
C(21B)-C(20B)-H(20B)	106.3	
C(20B)-C(22B)-H(22D)	109.5	
C(20B)-C(22B)-H(22E)	109.5	
H(22D)-C(22B)-H(22E)	109.5	
C(20B)-C(22B)-H(22F)	109.3	
H(22D)-C(22B)-H(22F)	109.5	
H(22E)-C(22B)-H(22F)	109.5	
C(20B)-C(21B)-H(21D)	110.2	30
C(20B)-C(21B)-H(21E)	109.4	
H(21D)-C(21B)-H(21E)	109.5	
C(20B)-C(21B)-H(21F)	108.8	
H(21D)-C(21B)-H(21F)	109.5	
H(21E)-C(21B)-H(21F)	109.5	
C(11')-C(12')-C(13')	111.0(13)	
C(11')-C(12')-H(12E)	109.4	
C(13')-C(12')-H(12E)	109.7	
C(11')-C(12')-H(12F)	109.8	
C(13')-C(12')-H(12F)	108.9	
H(12E)-C(12')-H(12F)	108.0	
C(11')-C(9')-C(8B)	108.5(15)	40
C(11')-C(9')-H(9BC)	110.2	
C(8B)-C(9')-H(9BC)	109.7	

C(11')-C(9')-H(9BD)	109.9	
C(8B)-C(9')-H(9BD)	110.3	
H(9BC)-C(9')-H(9BD)	108.3	
C(8B)-C(14')-C(15')	108.3(13)	
C(8B)-C(14')-C(13')	109.7(13)	
C(15')-C(14')-C(13')	106.5(15)	
C(8B)-C(14')-H(14')	111.1	
C(15')-C(14')-H(14')	110.6	
C(13')-C(14')-H(14')	110.5	
C(14')-C(13')-C(17')	98.8(11)	
C(14')-C(13')-C(12')	110.8(17)	10
C(17')-C(13')-C(12')	122.8(15)	
C(14')-C(13')-H(13')	107.9	
C(17')-C(13')-H(13')	107.7	
C(12')-C(13')-H(13')	107.8	
C(12')-C(11')-C(9')	112.5(18)	
C(12')-C(11')-H(11E)	108.6	
C(9')-C(11')-H(11E)	108.7	
C(12')-C(11')-H(11F)	109.6	
C(9')-C(11')-H(11F)	109.5	
H(11E)-C(11')-H(11F)	107.9	
C(14')-C(15')-C(16')	98.5(12)	20
C(14')-C(15')-H(15E)	112.0	
C(16')-C(15')-H(15E)	112.7	
C(14')-C(15')-H(15F)	111.7	
C(16')-C(15')-H(15F)	111.9	
H(15E)-C(15')-H(15F)	109.7	
C(20')-C(17')-C(13')	115.8(13)	
C(20')-C(17')-C(16')	110.6(13)	
C(13')-C(17')-C(16')	107.3(13)	
C(20')-C(17')-H(17')	107.9	
C(13')-C(17')-H(17')	107.4	
C(16')-C(17')-H(17')	107.5	
C(15')-C(16')-C(17')	106.8(14)	30
C(15')-C(16')-H(16E)	109.9	
C(17')-C(16')-H(16E)	110.7	
C(15')-C(16')-H(16F)	110.1	
C(17')-C(16')-H(16F)	110.8	
H(16E)-C(16')-H(16F)	108.6	
C(17')-C(20')-C(21')	115.7(14)	
C(17')-C(20')-C(22')	112.9(18)	
C(21')-C(20')-C(22')	110(2)	
C(17')-C(20')-H(20C)	105.6	
C(21')-C(20')-H(20C)	105.5	
C(22')-C(20')-H(20C)	105.8	40
C(20')-C(22')-H(22G)	109.6	
C(20')-C(22')-H(22H)	109.7	
H(22G)-C(22')-H(22H)	109.5	

C(20')-C(22')-H(22I)	109.1
H(22G)-C(22')-H(22I)	109.5
H(22H)-C(22')-H(22I)	109.5
C(20')-C(21')-H(21G)	109.3
C(20')-C(21')-H(21H)	109.7
H(21G)-C(21')-H(21H)	109.5
C(20')-C(21')-H(21I)	109.5
H(21G)-C(21')-H(21I)	109.5
H(21H)-C(21')-H(21I)	109.5
C(2)-C(1)-C(6)	120.0
C(2)-C(1)-H(1A)	120.0
C(6)-C(1)-H(1A)	120.0
C(1)-C(2)-C(3)	120.0
C(1)-C(2)-H(2A)	120.0
C(3)-C(2)-H(2A)	120.0
C(2)-C(3)-C(4)	120.0
C(2)-C(3)-H(3A)	120.0
C(4)-C(3)-H(3A)	120.0
C(5)-C(4)-C(3)	120.0
C(5)-C(4)-H(4A)	120.0
C(3)-C(4)-H(4A)	120.0
C(4)-C(5)-C(6)	120.00(5)
C(4)-C(5)-H(5A)	120.0
C(6)-C(5)-H(5A)	120.0
C(5)-C(6)-C(1)	120.0
C(5)-C(6)-H(6A)	120.0
C(1)-C(6)-H(6A)	120.0

10

20

【 0 0 2 8 】

【表 5】

051810の異方性変位パラメーター[$\text{\AA}^2 \times 10^3$].異方性変位因子指数は以下の形を取る: $-2\pi^2[h^2a^{*2}U_{11} + \dots + 2hka^*b^*U_{12}]$

	U_{11}	U_{22}	U_{33}	U_{23}	U_{13}	U_{12}	
O(1A)	50(4)	34(3)	93(4)	21(3)	2(3)	9(3)	10
O(3A)	41(4)	48(3)	64(3)	-2(3)	7(3)	6(3)	
C(10A)	53(6)	33(4)	54(5)	-5(3)	-2(4)	-4(4)	
C(1A)	35(5)	27(4)	76(5)	12(4)	3(4)	5(3)	
C(3A)	37(5)	36(4)	75(5)	-2(4)	-6(4)	4(4)	
C(14A)	53(6)	36(4)	56(5)	3(4)	0(4)	6(4)	
C(4A)	50(6)	36(4)	61(5)	7(4)	0(4)	-6(4)	
C(13A)	42(5)	35(4)	50(4)	8(3)	4(4)	9(4)	
C(7A)	60(6)	35(4)	55(5)	-8(4)	13(4)	-9(4)	
C(17A)	42(5)	45(4)	52(5)	7(4)	-3(4)	3(4)	
C(2A)	41(5)	50(5)	50(4)	12(4)	8(4)	4(4)	20
C(15A)	52(6)	39(4)	58(5)	8(4)	6(4)	0(4)	
C(8A)	44(5)	35(4)	50(5)	8(4)	4(4)	6(4)	
C(9A)	53(6)	47(5)	56(5)	2(4)	10(4)	1(4)	
C(12A)	54(6)	36(4)	46(4)	6(3)	2(4)	9(4)	
C(5A)	36(5)	39(4)	55(4)	0(4)	4(4)	1(4)	
C(16A)	43(5)	44(5)	62(5)	4(4)	-3(4)	2(4)	
C(21A)	48(6)	43(4)	53(4)	1(4)	2(4)	10(4)	
C(20A)	39(5)	38(4)	57(5)	1(4)	-1(4)	4(4)	
C(11A)	59(6)	40(4)	53(5)	4(4)	3(4)	5(4)	30
C(6A)	50(5)	33(4)	60(5)	2(4)	8(4)	-3(4)	
C(22A)	59(6)	47(5)	59(5)	0(4)	-12(4)	-1(4)	
C(2A')	77(8)	78(6)	74(6)	-4(5)	-5(5)	33(6)	
O(3B)	49(4)	34(3)	60(3)	-1(2)	-3(3)	4(2)	
O(1B)	48(3)	31(3)	41(3)	-5(2)	-3(2)	4(2)	
C(1B)	44(5)	28(4)	45(4)	-2(3)	-1(3)	-4(3)	
C(2B)	37(5)	42(4)	41(4)	-3(3)	0(3)	-4(3)	
C(10B)	54(6)	38(4)	56(5)	-3(4)	3(4)	-3(4)	
C(3B)	49(5)	32(4)	57(5)	-6(4)	0(4)	-3(4)	40
C(4B)	49(5)	39(4)	55(5)	-10(4)	3(4)	-2(4)	
C(6B)	49(6)	55(5)	48(5)	-6(4)	-4(4)	10(4)	
C(5B)	45(5)	36(4)	51(4)	-10(3)	-3(4)	10(4)	
C(7B)	38(5)	79(6)	57(5)	15(4)	1(4)	12(5)	
C(2B')	59(6)	42(5)	66(5)	-1(4)	1(5)	4(4)	
C(8B)	33(6)	124(9)	68(6)	37(7)	6(5)	28(6)	
C(12B)	83(18)	190(30)	43(14)	64(16)	31(12)	80(20)	
C(9B)	43(13)	100(20)	48(13)	5(13)	-7(9)	8(16)	
C(14B)	16(11)	118(13)	63(11)	38(10)	26(8)	27(10)	
C(13B)	74(16)	109(19)	74(15)	40(15)	38(13)	44(15)	

C(11B)	32(16)	170(40)	89(19)	40(20)	22(12)	20(17)	
C(15B)	44(14)	140(30)	150(30)	110(20)	30(20)	20(20)	
C(17B)	9(12)	87(19)	230(30)	70(20)	-3(15)	13(11)	
C(16B)	50(13)	84(15)	170(20)	66(17)	0(13)	-1(11)	
C(20B)	110(20)	140(30)	200(30)	120(30)	70(20)	90(20)	
C(22B)	120(20)	140(20)	300(40)	140(30)	130(30)	51(19)	
C(21B)	410(90)	170(50)	120(30)	100(40)	100(50)	100(50)	
C(12')	44(15)	10(9)	82(17)	-11(11)	3(11)	0(9)	
C(9')	38(17)	23(13)	77(17)	-8(11)	-5(11)	-1(10)	
C(14')	18(16)	64(14)	53(16)	17(12)	35(12)	35(12)	
C(13')	50(16)	34(14)	26(13)	-8(9)	2(11)	0(12)	10
C(11')	34(14)	42(12)	41(11)	-8(9)	0(9)	-22(9)	
C(15')	15(13)	44(9)	39(10)	12(7)	5(7)	-3(8)	
C(17')	44(13)	13(11)	56(12)	2(9)	-7(10)	-4(9)	
C(16')	37(14)	14(10)	56(13)	-22(10)	-7(11)	12(9)	
C(20')	130(20)	48(17)	42(14)	-7(13)	-1(15)	-9(16)	
C(22')	160(30)	31(13)	46(14)	5(11)	35(15)	-24(14)	
C(21')	120(20)	49(15)	56(14)	18(11)	-35(14)	9(14)	
C(1)	55(14)	51(11)	95(14)	-8(10)	2(10)	11(9)	
C(2)	62(14)	50(10)	80(13)	-31(10)	15(10)	9(10)	
C(3)	83(16)	53(10)	71(12)	-10(9)	12(12)	-1(11)	
C(4)	63(13)	36(9)	74(12)	-12(8)	3(9)	4(9)	20
C(5)	91(15)	30(9)	67(12)	7(8)	7(11)	3(9)	
C(6)	87(17)	49(11)	85(13)	-1(10)	7(13)	11(11)	

【 0 0 2 9 】

【表 6】

051810の水素座標($\times 10^4$)および等方性変位パラメーター($\text{\AA}^2 \times 10^3$)。

	x	y	z	U(eq)	
H(1AA)	-772	7508	7121	88	
H(3AA)	-3165	9304	7389	76	
H(10A)	-1247	8212	6304	56	
H(10B)	1787	8337	6445	56	10
H(1AB)	-3008	8283	6896	55	
H(3AB)	1358	9452	7284	59	
H(14A)	-9307	9042	5399	58	
H(4AA)	363	9843	6686	59	
H(4AB)	2855	9400	6681	59	
H(13A)	-4349	9078	4977	51	
H(7AA)	-4044	8620	5914	60	
H(17A)	-9414	8836	4624	56	
H(15A)	-5210	8145	5369	59	
H(15B)	-8177	8093	5557	59	
H(9AA)	-8336	9998	5677	62	
H(9AB)	-5281	10140	5802	62	20
H(12A)	-6487	9896	4689	55	
H(12B)	-9123	9821	4943	55	
H(16A)	-10428	8123	5010	60	
H(16B)	-7704	7797	4884	60	
H(21A)	-3850	9281	4334	72	
H(21B)	-6364	9194	4063	72	
H(21C)	-3535	8874	3988	72	
H(20A)	-4155	8293	4514	53	
H(11A)	-3707	10126	5198	61	
H(11B)	-6304	10539	5209	61	
H(6AA)	-2553	9730	6201	57	30
H(22A)	-5981	7928	3955	82	
H(22B)	-8841	8235	4031	82	
H(22C)	-7870	7716	4282	82	
H(1A')	2123	7979	7458	114	
H(2A')	2789	8630	7600	114	
H(3BA)	-2777	10226	7889	72	
H(1BA)	-4248	11964	8280	60	
H(1BB)	-2397	11477	7816	47	
H(10C)	-7059	11915	7420	59	
H(10D)	-3958	12098	7346	59	
H(3BB)	-7298	10278	7744	55	
H(4BA)	-6208	10435	7105	57	40
H(4BB)	-8532	10859	7249	57	
H(6BA)	-3190	10912	6723	61	
H(7BA)	-1379	12089	6870	69	

H(1B')	-8841	10751	8268	84	
H(2B')	-7733	11389	8381	84	
H(12C)	1489	12288	5463	126	
H(12D)	4012	12045	5691	126	
H(9BA)	-563	11014	6199	78	
H(9BB)	2594	11184	6199	78	
H(14B)	3687	12175	6372	79	
H(13B)	-381	12719	5970	103	
H(11C)	1004	11288	5606	115	
H(11D)	-1538	11661	5737	115	
H(15C)	2846	12767	6831	134	10
H(15D)	-5	12972	6664	134	
H(17B)	5058	13103	5913	131	
H(16C)	2418	13724	6451	121	
H(16D)	5278	13387	6482	121	
H(20B)	220	13778	5830	181	
H(22D)	3864	14386	5502	277	
H(22E)	5760	14097	5804	277	
H(22F)	3189	14475	5922	277	
H(21D)	-117	13593	5245	349	
H(21E)	1547	13024	5339	349	
H(21F)	3116	13572	5186	349	20
H(12E)	785	11834	5360	54	
H(12F)	3241	11581	5598	54	
H(9BC)	1963	10874	6148	55	
H(9BD)	-1223	10796	6237	55	
H(14')	4150	11946	6235	54	
H(13')	-708	12386	5882	44	
H(11E)	-427	10915	5590	47	
H(11F)	-2464	11390	5746	47	
H(15E)	3449	12658	6683	39	
H(15F)	490	12824	6519	39	
H(17')	4716	12684	5669	45	
H(16E)	5753	13064	6201	42	30
H(16F)	3094	13466	6185	42	
H(20C)	240	13461	5697	87	
H(22G)	2711	14036	5282	118	
H(22H)	5163	13584	5286	118	
H(22I)	4425	13933	5646	118	
H(21G)	-707	13362	5071	114	
H(21H)	-1382	12784	5285	114	
H(21I)	1345	12832	5048	114	
H(1A)	-219	14814	6255	81	
H(2A)	-706	14251	6784	77	
H(3A)	3213	13911	7091	83	
H(4A)	7619	14134	6869	69	40
H(5A)	8105	14697	6340	75	
H(6A)	4186	15037	6032	89	

【表 7】

051810の構造因子の観察値および計算値

h k l 10Fo 10Fc 10s				h k l 10Fo 10Fc 10s				h k l 10Fo 10Fc 10s				h k l 10Fo 10Fc 10s				h k l 10Fo 10Fc 10s			
2 0 0	42	37	16	3 0 1	336	325	28	2 11 1	322	300	23	-3 1 2	263	203	23	2 11 2	356	337	16
4 0 0	138	110	15	4 0 1	0	25	1	3 11 1	63	25	49	-2 1 2	315	296	10	3 11 2	206	176	15
1 1 0	437	450	11	-3 1 1	201	154	25	-4 12 1	194	205	21	-1 1 2	1086	934	28	-4 12 2	92	98	42
2 1 0	362	322	16	-2 1 1	116	114	8	-3 12 1	232	275	22	0 1 2	752	671	17	-3 12 2	200	196	18
3 1 0	252	218	24	-1 1 1	1143	962	30	-2 12 1	284	258	14	1 1 2	1040	934	33	-2 12 2	178	157	9
0 2 0	271	282	8	0 1 1	134	157	3	-1 12 1	522	526	18	2 1 2	338	296	14	-1 12 2	294	255	15
1 2 0	426	437	14	1 1 1	1115	961	54	0 12 1	680	694	30	3 1 2	241	203	26	0 12 2	286	242	28
2 2 0	277	256	13	2 1 1	125	114	9	1 12 1	509	525	23	4 1 2	147	115	13	1 12 2	275	255	15
3 2 0	352	250	29	3 1 1	212	154	23	2 12 1	260	258	9	-4 2 2	0	44	1	2 12 2	167	157	9
4 2 0	158	155	27	4 1 1	159	141	16	3 12 1	285	275	14	-3 2 2	297	289	26	3 12 2	216	196	31
1 3 0	177	158	10	-3 2 1	441	430	24	4 12 1	198	205	20	-2 2 2	679	628	20	4 12 2	110	98	16
2 3 0	400	366	25	-2 2 1	436	399	19	-4 13 1	80	79	45	0 2 2	84	89	5	-4 13 2	161	165	22
3 3 0	502	441	19	-1 2 1	1871	1484	56	-2 13 1	91	91	13	2 2 2	663	627	43	-3 13 2	209	217	18
4 3 0	108	115	41	0 2 1	142	155	3	-1 13 1	164	146	11	3 2 2	299	289	25	-2 13 2	67	40	28
0 4 0	2471	1827	86	1 2 1	1819	1485	117	0 13 1	365	339	38	4 2 2	23	44	23	-1 13 2	136	167	32
1 4 0	364	399	10	2 2 1	432	400	28	1 13 1	152	147	10	-3 3 2	176	158	17	0 13 2	457	437	21
2 4 0	337	336	22	3 2 1	453	431	34	2 13 1	69	92	17	-2 3 2	554	530	24	1 13 2	173	167	12
3 4 0	262	232	10	4 2 1	117	84	36	3 13 1	292	333	16	-1 3 2	403	447	12	2 13 2	60	40	20
4 4 0	121	91	37	-3 3 1	95	101	19	4 13 1	80	79	19	0 3 2	207	208	5	3 13 2	221	217	20
1 5 0	76	86	7	-2 3 1	356	355	23	-4 14 1	132	123	26	1 3 2	400	446	11	4 13 2	166	164	11
2 5 0	79	85	29	-1 3 1	861	840	26	-3 14 1	56	95	55	2 3 2	481	530	37	-4 14 2	106	114	34
3 5 0	117	101	12	0 3 1	1901	1442	47	-2 14 1	247	228	11	3 3 2	153	158	7	-3 14 2	170	192	14
4 5 0	175	222	27	1 3 1	857	839	30	-1 14 1	83	79	16	4 3 2	62	50	62	-2 14 2	118	88	17
0 6 0	296	309	14	2 3 1	358	354	23	0 14 1	324	311	11	-3 4 2	300	241	11	-1 14 2	197	158	23
1 6 0	589	676	20	3 3 1	139	100	15	1 14 1	65	79	30	-2 4 2	218	219	11	0 14 2	66	57	26
2 6 0	86	46	29	4 3 1	89	72	57	2 14 1	261	227	9	-1 4 2	639	687	17	1 14 2	171	158	11
3 6 0	199	199	14	-4 4 1	146	157	30	3 14 1	77	94	31	0 4 2	122	154	5	2 14 2	81	89	16
1 7 0	111	130	6	-3 4 1	294	284	11	4 14 1	116	123	14	1 4 2	651	686	15	3 14 2	165	192	18
2 7 0	99	12	27	-2 4 1	334	364	20	-3 15 1	11	72	11	2 4 2	200	219	18	4 14 2	118	114	14
3 7 0	164	132	10	-1 4 1	415	464	11	-2 15 1	164	167	10	3 4 2	310	241	12	-3 15 2	92	86	21
0 8 0	833	923	65	0 4 1	961	903	26	-1 15 1	119	102	13	4 4 2	113	91	40	-2 15 2	201	183	9
1 8 0	272	335	26	1 4 1	415	464	10	0 15 1	62	54	23	-3 5 2	346	301	12	-1 15 2	122	96	13
2 8 0	75	86	41	2 4 1	308	364	22	1 15 1	88	103	19	-2 5 2	56	61	24	0 15 2	16	5	15
3 8 0	158	156	23	3 4 1	292	283	12	2 15 1	166	167	10	-1 5 2	761	787	25	1 15 2	125	97	13
1 9 0	300	305	18	4 4 1	154	156	28	3 15 1	0	72	1	0 5 2	393	436	12	2 15 2	197	182	13
2 9 0	293	277	14	-3 5 1	218	162	21	-3 16 1	106	124	20	1 5 2	744	787	20	3 15 2	71	87	41
3 9 0	306	302	16	-2 5 1	251	211	16	-2 16 1	98	95	14	2 5 2	0	61	1	-3 16 2	161	175	29
0 10 0	259	184	39	-1 5 1	621	673	26	-1 16 1	79	59	29	3 5 2	344	301	14	-2 16 2	117	99	12
1 10 0	259	210	11	0 5 1	143	120	6	0 16 1	40	1	40	4 5 2	110	82	42	-1 16 2	157	148	14
2 10 0	77	5	43	1 5 1	624	673	16	1 16 1	87	59	25	-3 6 2	175	123	10	0 16 2	64	71	21
3 10 0	97	83	21	2 5 1	214	212	19	2 16 1	88	94	17	-2 6 2	245	245	12	1 16 2	152	148	15
1 11 0	348	359	13	3 5 1	193	163	11	3 16 1	111	124	18	-1 6 2	194	197	18	2 16 2	108	100	14
2 11 0	86	11	31	4 5 1	97	32	53	-3 17 1	85	71	25	0 6 2	717	764	21	3 16 2	165	175	14
3 11 0	236	225	17	-3 6 1	286	246	11	-2 17 1	272	247	10	1 6 2	184	199	7	-3 17 2	85	87	25
4 11 0	288	303	23	-2 6 1	179	174	25	-1 17 1	162	152	15	2 6 2	252	246	18	-2 17 2	52	37	36
0 12 0	585	527	37	-1 6 1	187	202	12	0 17 1	76	18	18	3 6 2	154	123	12	-1 17 2	91	86	25
1 12 0	283	234	12	0 6 1	478	526	14	1 17 1	159	153	15	4 6 2	71	16	71	0 17 2	365	396	10
2 12 0	344	321	15	1 6 1	170	202	6	2 17 1	280	248	10	-3 7 2	204	172	11	1 17 2	87	86	26
3 12 0	88	37	25	2 6 1	172	175	18	3 17 1	85	71	18	-2 7 2	233	236	19	2 17 2	53	37	35
4 12 0	169	156	21	3 6 1	284	246	15	-3 18 1	96	80	16	-1 7 2	144	136	16	3 17 2	80	87	20
1 13 0	38	9	37	-3 7 1	122	113	11	-2 18 1	103	83	13	0 7 2	133	137	11	-3 18 2	46	47	45
2 13 0	97	124	22	-2 7 1	399	369	17	-1 18 1	147	118	15	1 7 2	123	135	6	-2 18 2	128	146	12
3 13 0	168	188	18	-1 7 1	317	373	10	0 18 1	236	218	10	2 7 2	224	236	20	-1 18 2	161	73	48
4 13 0	88	4	40	0 7 1	185	170	7	1 18 1	119	118	24	3 7 2	201	172	10	0 18 2	153	126	16
0 14 0	105	104	19	1 7 1	313	372	9	2 18 1	66	83	22	4 7 2	141	21	25	1 18 2	74	73	35
1 14 0	164	161	11	2 7 1	368	369	28	3 18 1	46	80	46	-4 8 2	97	21	38	2 18 2	156	145	13
2 14 0	123	93	11	3 7 1	128	112	17	-3 19 1	75	77	21	-3 8 2	215	196	10	3 18 2	51	46	50
3 14 0	89	139	27	4 7 1	146	100	24	-2 19 1	115	124	11	-2 8 2	211	197	12	-3 19 2	20	9	20
4 14 0	0	50	1	-3 8 1	116	91	14	-1 19 1	103	120	19	-1 8 2	194	171	15	-2 19 2	157	149	18
1 15 0	83	60	30	-2 8 1	104	93	13	0 19 1	175	179	11	0 8 2	561	743	24	-1 19 2	143	167	14
2 15 0	248	227	10	-1 8 1	196	223	11	1 19 1	75	120	28	1 8 2	163	171	12	0 19 2	109	68	20
3 15 0	283	273	15	0 8 1	115	77	14	2 19 1	118	124	11	2 8 2	217	196	19	1 19 2	119	167	16
0 16 0	77	26	15	1 8 1	194	222	13	3 19 1	49	77	48	3 8 2	203	197	10				

2 20 0 154 143 15	1 10 1 375 401 14	0 23 1 100 89 17	1 10 2 87 77 14	-1 23 2 73 67 20
1 21 0 54 48 41	2 10 1 264 247 10	1 23 1 93 133 21	2 10 2 70 71 35	0 23 2 56 89 56
2 21 0 138 110 30	3 10 1 197 193 13	0 24 1 73 28 65	3 10 2 112 103 19	1 23 2 77 68 23
0 22 0 127 96 19	-4 11 1 35 51 35	0 0 2 730 648 22	-4 11 2 118 83 30	1 0 3 1331 1063 37
1 22 0 46 3 46	-3 11 1 50 25 50	1 0 2 696 652 18	-3 11 2 200 176 15	2 0 3 191 167 10
2 22 0 0 4 1	-2 11 1 328 299 17	2 0 2 545 482 23	-2 11 2 351 337 11	3 0 3 0 15 1
1 23 0 56 47 55	-1 11 1 242 239 11	3 0 2 143 121 29	-1 11 2 276 254 11	4 0 3 61 39 38
1 0 1 273 277 9	0 11 1 128 104 10	4 0 2 158 104 14	0 11 2 223 180 12	-4 1 3 113 112 17
2 0 1 277 257 12	1 11 1 247 240 10	-4 1 2 120 115 17	1 11 2 258 253 11	-3 1 3 63 76 63
-2 1 3 883 766 31	-3 11 3 156 130 16	0 0 4 609 605 21	-2 10 4 196 193 10	2 21 4 55 99 54
0 1 3 237 298 5	-2 11 3 131 124 8	1 0 4 1364 1149 59	-1 10 4 241 225 11	-2 22 4 79 106 78
1 1 3 2688 1939 125	-1 11 3 353 357 14	2 0 4 258 251 18	0 10 4 181 202 9	-1 22 4 0 34 1
2 1 3 881 767 54	0 11 3 308 330 12	3 0 4 124 63 36	1 10 4 247 224 10	0 22 4 60 3 43
3 1 3 55 76 55	1 11 3 368 355 13	4 0 4 85 25 72	2 10 4 192 194 8	1 22 4 54 34 50
4 1 3 86 112 73	2 11 3 130 124 18	-4 1 4 155 142 14	3 10 4 83 75 27	-1 23 4 52 28 52
-4 2 3 193 185 13	3 11 3 172 130 19	-3 1 4 183 177 26	4 10 4 78 68 19	0 23 4 0 63 1
-3 2 3 158 182 30	4 11 3 123 118 15	-2 1 4 330 312 11	-4 11 4 107 84 32	1 23 4 92 29 31
-2 2 3 709 661 24	-4 12 3 108 23 28	-1 1 4 1251 1117 36	-3 11 4 145 166 16	1 0 5 1538 1300 53
-1 2 3 718 720 18	-3 12 3 85 72 27	0 1 4 148 164 5	-2 11 4 129 128 9	2 0 5 212 190 16
0 2 3 861 785 21	-2 12 3 232 213 10	1 1 4 1211 1116 37	-1 11 4 639 621 22	3 0 5 110 101 16
1 2 3 688 719 21	-1 12 3 247 211 11	2 1 4 309 311 23	0 11 4 366 378 14	4 0 5 50 70 50
2 2 3 682 660 45	0 12 3 416 436 19	3 1 4 186 177 7	1 11 4 633 621 28	-4 1 5 94 60 51
3 2 3 189 182 23	1 12 3 232 212 17	4 1 4 147 142 30	2 11 4 127 129 10	-3 1 5 166 162 22
4 2 3 163 185 30	2 12 3 261 213 10	-4 2 4 91 65 21	3 11 4 169 167 14	-2 1 5 184 163 9
-4 3 3 30 73 30	3 12 3 105 72 21	-3 2 4 24 55 24	4 11 4 76 84 26	-1 1 5 353 405 11
-3 3 3 270 222 17	4 12 3 50 24 50	-2 2 4 502 497 17	-4 12 4 126 129 25	1 1 5 353 405 9
-2 3 3 431 447 21	-4 13 3 78 40 53	-1 2 4 1553 1343 44	-3 12 4 157 174 13	2 1 5 160 164 18
-1 3 3 824 853 29	-3 13 3 69 103 28	0 2 4 912 866 24	-2 12 4 174 162 9	3 1 5 177 162 7
0 3 3 12 22 12	-2 13 3 114 129 11	1 2 4 1484 1343 47	-1 12 4 247 267 11	4 1 5 57 60 56
1 3 3 845 854 22	-1 13 3 362 354 14	2 2 4 440 497 34	0 12 4 0 15 1	-4 2 5 239 234 21
2 3 3 369 448 30	0 13 3 229 201 14	3 2 4 33 55 33	1 12 4 259 267 20	-3 2 5 226 219 25
3 3 3 261 223 16	1 13 3 357 352 11	4 2 4 0 65 1	2 12 4 177 162 9	-2 2 5 545 510 18
4 3 3 0 72 1	2 13 3 145 128 9	-4 3 4 175 159 14	3 12 4 150 175 17	-1 2 5 872 843 50
-4 4 3 167 219 28	3 13 3 113 104 18	-3 3 4 197 181 27	4 12 4 137 129 15	0 2 5 539 558 14
-3 4 3 427 405 17	4 13 3 67 40 32	-2 3 4 147 125 7	-4 13 4 126 148 29	1 2 5 821 843 25
-2 4 3 285 265 11	-4 14 3 28 46 27	-1 3 4 580 609 24	-3 13 4 66 64 32	2 2 5 501 510 36
-1 4 3 655 695 22	-3 14 3 165 200 15	0 3 4 1479 1230 40	-2 13 4 231 228 9	3 2 5 217 219 10
0 4 3 745 728 20	-2 14 3 335 300 21	1 3 4 569 608 15	-1 13 4 204 186 11	4 2 5 199 234 29
1 4 3 643 694 17	-1 14 3 224 190 9	2 3 4 117 125 20	0 13 4 183 142 13	-4 3 5 194 196 15
2 4 3 255 266 21	0 14 3 0 20 1	3 3 4 201 181 10	1 13 4 202 185 8	-2 3 5 0 25 1
3 4 3 430 406 16	1 14 3 214 190 10	4 3 4 140 160 34	2 13 4 257 228 7	-3 3 5 377 386 22
4 4 3 197 219 24	2 14 3 326 301 15	-4 4 4 25 49 25	3 13 4 64 65 43	-1 3 5 297 351 14
-4 5 3 93 140 53	3 14 3 160 199 28	-3 4 4 247 224 14	4 13 4 171 148 14	0 3 5 232 241 7
-3 5 3 296 252 19	4 14 3 69 46 26	-2 4 4 282 307 13	-4 14 4 80 97 54	1 3 5 300 352 13
-2 5 3 65 54 16	-3 15 3 92 115 21	-1 4 4 566 591 19	-3 14 4 100 85 17	2 3 5 342 384 25
-1 5 3 623 686 16	-2 15 3 193 171 9	0 4 4 249 269 7	-2 14 4 190 201 10	3 3 5 42 25 41
0 5 3 360 383 11	-1 15 3 307 285 13	1 4 4 551 591 15	-1 14 4 277 261 10	4 3 5 209 195 25
1 5 3 620 685 16	0 15 3 60 54 25	2 4 4 264 307 21	0 14 4 0 25 1	-4 4 5 88 99 27
2 5 3 0 55 1	1 15 3 311 285 13	3 4 4 261 224 11	1 14 4 286 262 17	-3 4 5 231 244 30
3 5 3 288 252 13	2 15 3 198 171 10	4 4 4 59 48 59	2 14 4 187 200 9	-2 4 5 246 225 12
4 5 3 88 140 64	3 15 3 90 116 29	-4 5 4 131 93 13	3 14 4 69 84 34	-1 4 5 204 241 7
-4 6 3 105 78 32	-3 16 3 0 30 1	-3 5 4 192 167 12	4 14 4 76 97 22	0 4 5 518 540 16
-3 6 3 328 334 12	-2 16 3 115 84 12	-2 5 4 285 263 13	-3 15 4 66 55 44	1 4 5 207 242 6
-2 6 3 443 439 20	-1 16 3 194 185 13	-1 5 4 129 136 8	-2 15 4 365 355 12	2 4 5 242 225 18
-1 6 3 306 362 15	0 16 3 61 49 38	0 5 4 165 169 7	-1 15 4 170 143 19	3 4 5 269 244 11
0 6 3 350 407 11	1 16 3 180 185 16	1 5 4 140 137 5	0 15 4 163 141 8	4 4 5 75 100 75
1 6 3 308 362 8	2 16 3 89 84 19	2 5 4 255 262 22	1 15 4 145 142 12	-4 5 5 150 147 14
2 6 3 449 440 28	3 16 3 0 30 1	3 5 4 200 168 11	2 15 4 374 356 13	-3 5 5 68 52 19
3 6 3 331 334 13	-3 17 3 108 104 45	4 5 4 77 93 77	3 15 4 36 55 36	-2 5 5 141 109 10
4 6 3 0 78 1	-2 17 3 95 79 15	-4 6 4 128 89 33	-3 16 4 104 97 17	-1 5 5 58 69 11
-4 7 3 144 112 24	-1 17 3 121 85 20	-3 6 4 211 179 11	-2 16 4 222 202 9	0 5 5 356 366 11
-3 7 3 143 125 15	0 17 3 223 184 9	-2 6 4 568 553 37	-1 16 4 192 188 15	1 5 5 63 68 8
-2 7 3 283 250 17	1 17 3 103 85 21	-1 6 4 195 211 19	0 16 4 134 150 9	2 5 5 120 109 23
-1 7 3 322 398 11	2 17 3 87 79 16	0 6 4 616 607 18	1 16 4 186 188 14	3 5 5 70 52 38
0 7 3 0 13 1	3 17 3 88 104 19	1 6 4 196 210 6	2 16 4 231 203 10	4 5 5 130 148 35
1 7 3 315 397 9	-3 18 3 158 169 19	2 6 4 578 553 35	3 16 4 56 97 48	-4 6 5 159 142 15
2 7 3 269 251 21	-2 18 3 79 73 18	3 6 4 177 179 12	-3 17 4 44 71 44	-3 6 5 294 243 11
3 7 3 136 125 12	-1 18 3 196 135 19	4 6 4 69 89 68	-2 17 4 127 109 11	-2 6 5 340 329 18
-4 8 3 111 95 32	0 18 3 0 17 1	-4 7 4 81 88 28	-1 17 4 233 230 15	-1 6 5 562 622 22
-3 8 3 219 191 11	1 18 3 145 135 21	-3 7 4 184 153 9	0 17 4 231 204 14	0 6 5 941 879 28
-2 8 3 284 259 14	2 18 3 54 73 54	-2 7 4 205 180 11	1 17 4 243 230 14	1 6 5 569 622 15
0 8 3 169 174 16	3 18 3 178 170 11	-1 7 4 311 377 19	2 17 4 114 109 12	2 6 5 351 329 23
-1 8 3 56 67 16	-3 19 3 27 63 26	0 7 4 179 176 7	3 17 4 51 72 51	3 6 5 263 243 13
1 8 3 156 174 9	-2 19 3 91 52 25	1 7 4 318 376 8	-3 18 4 126 120 36	4 6 5 127 142 38
2 8 3 293 259 21	-1 19 3 180 152 20	2 7 4 177 181 22	-2 18 4 88 68 16	-4 7 5 122 137 16
3 8 3 207 191 10	0 19 3 86 24 20	3 7 4 173 152 44	-1 18 4 350 341 17	-3 7 5 297 305 13
4 8 3 138 95 25	1 19 3 154 153 14	-4 8 4 71 32 71	0 18 4 88 117 19	-2 7 5 71 64 20
-4 9 3 157 129 24	2 19 3 80 52 27	-3 8 4 116 106 17	1 18 4 337 341 18	-1 7 5 376 436 24
-3 9 3 83 76 32	3 19 3 78 63 21	-2 8 4 83 58 18	2 18 4 38 68 37	0 7 5 389 456 14
-2 9 3 117 95 13	-2 20 3 74 55 17	-1 8 4 258 239 21	3 18 4 120 120 14	1 7 5 394 436 11
-1 9 3 442 456 15	-1 20 3 102 102 17	0 8 4 145 138 10	-3 19 4 64 37 64	2 7 5 64 65 64
0 9 3 61 69 16	0 20 3 108 69 31	1 8 4 259 238 11	-2 19 4 85 89 16	3 7 5 312 305 13
1 9 3 440 457 17	1 20 3 83 102 19	2 8 4 64 58 63	-1 19 4 151 158 13	4 7 5 132 137 34
2 9 3 110 94 31	2 20 3 74 54 74	3 8 4 82 105 23	0 19 4 342 328 12	-4 8 5 71 47 27
3 9 3 109 77 18	-2 21 3 77 50 27	4 8 4 0 32 1	1 19 4 146 156 16	-3 8 5 111 96 17
4 9 3 161 129 23	-1 21 3 101 115 21	-4 9 4 61 70 60	2 19 4 112 88 18	-2 8 5 167 148 14
-4 10 3 77 59 64	0 21 3 334 357 12	-3 9 4 118 111 17	3 19 4 68 36 68	-1 8 5 335 365 21
-3 10 3 195 187 14	1 21 3 86 116 19	-2 9 4 141 100 12	-2 20 4 130 122 10	0 8 5 532 614 16
-2 10 3 244 211 8	2 21 3 94 51 21	-1 9 4 259 237 16	-1 20 4 110 103 16	1 8 5 346 365 22
-1 10 3 201 177 10	-1 22 3 91 97 20	0 9 4 692 686 21	0 20 4 185 173 10	2 8 5 120 148 30

10

20

30

40

10

20

30

40

-2 20 5 172 163 12	0 8 6 0 35 1	0 19 6 351 348 13	-3 8 7 197 188 12	3 18 7 68 57 27
-1 20 5 44 77 43	1 8 6 542 524 25	1 19 6 72 69 25	-2 8 7 162 156 12	-2 19 7 93 70 16
0 20 5 115 116 14	2 8 6 451 416 30	2 19 6 317 338 23	-1 8 7 579 589 21	-1 19 7 107 124 14
0 19 7 85 56 32	-4 8 8 104 64 24	2 18 8 117 142 18	4 7 9 82 108 82	1 18 9 35 3 35
1 19 7 93 124 20	-3 8 8 189 196 12	3 18 8 49 35 48	-4 8 9 112 119 23	2 18 9 211 260 16
2 19 7 52 70 51	-2 8 8 110 97 8	-2 19 8 252 257 14	-3 8 9 226 233 13	3 18 9 39 47 38
-2 20 7 68 82 20	-1 8 8 417 439 15	-1 19 8 123 137 14	-2 8 9 230 201 7	-2 19 9 101 91 14
-1 20 7 49 66 49	0 8 8 391 381 12	0 19 8 323 306 12	-1 8 9 171 137 10	-1 19 9 88 117 17
0 20 7 96 94 17	1 8 8 438 440 16	1 19 8 113 137 38	0 8 9 132 135 9	0 19 9 66 24 30
1 20 7 61 66 39	2 8 8 104 98 24	2 19 8 256 256 20	1 8 9 161 138 12	1 19 9 79 117 21
2 20 7 50 82 50	3 8 8 210 196 12	-2 20 8 127 108 14	2 8 9 243 201 15	2 19 9 65 92 36
-2 21 7 0 22 1	4 8 8 54 65 42	-1 20 8 147 123 32	3 8 9 259 232 11	-2 20 9 92 85 14
-1 21 7 88 97 16	-4 9 8 36 57 35	0 20 8 59 76 46	4 8 9 115 120 14	-1 20 9 221 209 21
0 21 7 375 331 26	-3 9 8 96 119 19	1 20 8 101 123 17	-4 9 9 89 63 30	0 20 9 154 167 12
1 21 7 95 96 17	-2 9 8 174 165 7	2 20 8 94 108 21	-3 9 9 136 161 38	1 20 9 213 210 13
2 21 7 59 22 59	-1 9 8 292 269 12	-2 21 8 69 75 18	-2 9 9 189 181 7	2 20 9 62 86 41
-1 22 7 53 89 42	0 9 8 95 83 12	-1 21 8 197 226 18	-1 9 9 319 285 12	-2 21 9 28 43 28
0 22 7 0 31 1	1 9 8 292 269 14	0 21 8 89 45 21	0 9 9 53 9 34	-1 21 9 25 20 24
1 22 7 78 89 23	2 9 8 167 165 11	1 21 8 204 226 17	1 9 9 307 285 16	0 21 9 113 127 29
-1 23 7 26 38 26	3 9 8 127 119 16	2 21 8 97 76 27	2 9 9 194 181 11	1 21 9 46 19 45
0 23 7 0 2 1	4 9 8 0 57 1	-1 22 8 69 57 23	3 9 9 162 161 13	2 21 9 80 43 36
1 23 7 40 38 40	-4 10 8 77 77 36	0 22 8 0 27 1	4 9 9 63 63 30	-1 22 9 99 96 15
0 0 8 682 694 29	-3 10 8 82 58 82	1 22 8 67 57 29	-4 10 9 99 62 22	0 22 9 0 5 1
1 0 8 126 138 6	-2 10 8 209 230 9	0 23 8 88 71 20	-3 10 9 0 23 1	1 22 9 113 96 15
2 0 8 457 482 29	-1 10 8 377 364 14	1 0 9 73 75 10	-2 10 9 262 256 8	0 23 9 69 43 26
3 0 8 159 153 24	0 10 8 126 150 12	2 0 9 184 183 17	-1 10 9 328 335 13	0 0 10 268 335 12
4 0 8 0 44 1	1 10 8 391 364 17	3 0 9 30 10 30	0 10 9 127 113 12	1 0 10 362 410 13
-4 1 8 53 90 53	2 10 8 245 230 19	4 0 9 135 165 33	1 10 9 347 334 16	2 0 10 241 247 12
-3 1 8 0 25 1	3 10 8 80 59 32	-4 1 9 39 86 38	2 10 9 272 257 10	3 0 10 84 89 16
-2 1 8 362 346 16	4 10 8 112 77 14	-3 1 9 0 117 1	3 10 9 0 23 1	4 0 10 0 2 1
-1 1 8 98 106 7	-4 11 8 109 110 22	-2 1 9 338 335 12	4 10 9 83 62 21	-4 1 10 273 264 43
0 1 8 184 165 7	-3 11 8 70 87 69	-1 1 9 251 304 12	-4 11 9 111 109 21	-3 1 10 81 73 36
1 1 8 91 106 6	-2 11 8 205 202 8	0 1 9 461 508 14	-3 11 9 92 105 20	-2 1 10 102 99 11
2 1 8 368 346 24	-1 11 8 0 23 1	1 1 9 258 304 8	-2 11 9 59 66 28	-1 1 10 203 213 11
3 1 8 58 24 57	0 11 8 592 594 21	2 1 9 344 335 22	-1 11 9 123 99 13	0 1 10 246 265 8
4 1 8 64 89 64	1 11 8 48 22 47	3 1 9 118 117 11	0 11 9 193 205 10	1 1 10 195 214 11
-4 2 8 86 53 80	2 11 8 209 201 10	4 1 9 76 86 75	1 11 9 122 99 18	2 1 10 114 99 22
-3 2 8 165 151 8	3 11 8 131 86 42	-4 2 9 136 76 19	2 11 9 96 66 15	3 1 10 82 73 18
-2 2 8 142 123 10	4 11 8 135 110 30	-3 2 9 175 157 16	3 11 9 110 105 21	4 1 10 242 263 26
-1 2 8 249 274 7	-4 12 8 124 110 19	-2 2 9 239 238 12	4 11 9 114 109 15	-4 2 10 163 116 19
0 2 8 640 649 19	-3 12 8 128 173 14	-1 2 9 713 816 31	-4 12 9 83 75 33	-3 2 10 112 89 9
1 2 8 239 275 8	-2 12 8 30 10 29	0 2 9 741 783 26	-3 12 9 87 94 19	-2 2 10 233 253 11
2 2 8 103 122 27	-1 12 8 36 58 35	1 2 9 731 816 29	-2 12 9 0 25 1	-1 2 10 437 476 29
3 2 8 166 152 10	0 12 8 0 42 1	2 2 9 232 237 19	-1 12 9 313 323 11	0 2 10 139 133 7
4 2 8 0 53 1	1 12 8 64 59 47	3 2 9 156 157 11	0 12 9 318 324 16	1 2 10 426 477 13
-4 3 8 92 119 30	2 12 8 49 9 48	4 2 9 87 76 67	1 12 9 315 325 11	2 2 10 214 254 20
-3 3 8 216 228 7	3 12 8 185 173 13	-4 3 9 78 76 39	2 12 9 37 25 37	3 2 10 67 89 24
-2 3 8 288 261 13	4 12 8 110 110 19	-3 3 9 205 188 7	3 12 9 97 95 17	4 2 10 58 116 58
-1 3 8 710 725 27	-4 13 8 89 10 88	-2 3 9 181 181 10	4 12 9 44 75 43	-4 3 10 259 235 29
0 3 8 0 2 1	-3 13 8 88 106 19	-1 3 9 147 154 7	-4 13 9 117 124 35	-3 3 10 154 148 7
1 3 8 650 725 20	-2 13 8 185 188 10	0 3 9 519 573 18	-3 13 9 171 191 12	-2 3 10 262 254 13
2 3 8 272 260 21	-1 13 8 131 116 14	1 3 9 139 154 6	-2 13 9 69 79 24	-1 3 10 271 277 12
3 3 8 242 228 20	0 13 8 300 282 10	2 3 9 142 181 24	-1 13 9 324 308 10	0 3 10 356 421 11
4 3 8 136 119 31	1 13 8 136 116 9	3 3 9 199 188 17	0 13 9 109 61 29	1 3 10 278 277 12
-4 4 8 208 185 15	2 13 8 194 188 10	4 3 9 96 77 48	1 13 9 317 308 10	2 3 10 280 254 19
-3 4 8 104 93 10	3 13 8 108 106 14	-4 4 9 98 87 28	2 13 9 108 79 15	3 3 10 165 147 15
-2 4 8 321 348 16	4 13 8 0 10 1	-3 4 9 127 128 12	3 13 9 152 191 11	4 3 10 156 234 33
-1 4 8 117 132 7	-3 14 8 51 64 51	-2 4 9 243 254 12	4 13 9 135 123 15	-4 4 10 259 233 17
0 4 8 536 592 16	-2 14 8 185 178 11	-1 4 9 626 693 46	-3 14 9 133 128 27	-3 4 10 41 37 41
1 4 8 131 131 5	-1 14 8 148 136 15	0 4 9 822 828 29	-2 14 9 142 120 12	-2 4 10 221 211 16
2 4 8 364 347 21	0 14 8 259 236 8	1 4 9 626 694 19	-1 14 9 206 187 9	-1 4 10 586 665 32
3 4 8 82 93 20	1 14 8 159 137 10	2 4 9 253 254 19	0 14 9 95 103 12	0 4 10 144 158 7
4 4 8 122 185 42	2 14 8 204 178 11	3 4 9 138 128 12	1 14 9 199 187 9	1 4 10 616 663 20
-4 5 8 207 215 15	3 14 8 61 64 37	4 4 9 54 87 53	2 14 9 120 121 16	2 4 10 201 212 21
-3 5 8 138 139 13	-3 15 8 67 64 30	-4 5 9 203 177 29	3 14 9 117 128 20	3 4 10 9 37 8
-2 5 8 261 278 13	-2 15 8 75 69 18	-3 5 9 211 223 9	-3 15 9 45 47 45	-4 5 10 95 80 30
-1 5 8 220 239 13	-1 15 8 118 118 14	-2 5 9 288 283 14	-2 15 9 65 72 24	-3 5 10 246 254 19
0 5 8 773 792 27	0 15 8 464 472 12	-1 5 9 89 100 10	-1 15 9 187 178 10	-2 5 10 39 23 38
1 5 8 225 240 7	1 15 8 133 117 11	0 5 9 273 345 9	0 15 9 84 65 15	-1 5 10 171 162 17
2 5 8 291 277 19	2 15 8 44 70 43	1 5 9 102 99 9	1 15 9 190 178 11	0 5 10 846 854 25
3 5 8 150 139 15	3 15 8 69 64 25	2 5 9 301 284 21	2 15 9 27 72 26	1 5 10 164 162 7
4 5 8 144 215 31	-3 16 8 76 52 49	3 5 9 224 223 11	3 15 9 46 46 45	2 5 10 0 24 1
-4 6 8 199 158 23	-2 16 8 81 87 17	4 5 9 138 176 30	-3 16 9 56 69 56	3 5 10 251 254 17
-3 6 8 261 246 10	-1 16 8 230 204 12	-4 6 9 91 37 31	-2 16 9 219 235 10	4 5 10 91 80 43
-2 6 8 301 303 14	0 16 8 207 204 13	-3 6 9 219 218 9	-1 16 9 223 218 12	-4 6 10 79 75 41
-1 6 8 184 217 9	1 16 8 222 204 21	-2 6 9 78 59 20	0 16 9 126 113 11	-3 6 10 294 283 8
0 6 8 516 526 15	2 16 8 107 87 19	-1 6 9 42 45 41	1 16 9 216 218 13	-2 6 10 269 256 13
1 6 8 200 215 6	3 16 8 24 51 23	0 6 9 413 441 12	2 16 9 248 235 18	-1 6 10 433 491 26
2 6 8 308 304 22	-3 17 8 146 137 23	1 6 9 66 47 12	3 16 9 66 68 29	0 6 10 951 909 29
3 6 8 252 246 12	-2 17 8 161 162 11	2 6 9 57 59 56	-3 17 9 0 63 1	1 6 10 445 491 26
4 6 8 99 158 45	-1 17 8 260 251 14	3 6 9 228 219 12	-2 17 9 114 123 17	2 6 10 255 257 22
-4 7 8 76 65 44	0 17 8 0 35 1	4 6 9 0 37 1	-1 17 9 311 266 14	3 6 10 293 282 22
-3 7 8 213 181 9	1 17 8 248 251 14	-4 7 9 102 108 27	0 17 9 32 30 32	4 6 10 83 75 54
-2 7 8 329 326 15	2 17 8 166 161 13	-3 7 9 248 252 12	1 17 9 319 266 20	-4 7 10 113 128 42
-1 7 8 70 51 23	3 17 8 145 138 14	-2 7 9 305 333 16	2 17 9 121 123 18	-3 7 10 23 49 23
0 7 8 117 117 12	-3 18 8 68 34 48	-1 7 9 216 230 9	3 17 9 35 63 35	-2 7 10 455 473 12
1 7 8 42 51 42	-2 18 8 156 142 10	0 7 9 468 496 14	-3 18 9 0 47 1	-1 7 10 73 97 26
2 7 8 335 327 23	-1 18 8 237 251 10	1 7 9 195 230 9	-2 18 9 262 260 10	0 7 10 827 837 29
3 7 8 193 182 15	0 18 8 218 187 10	2 7 9 359 333 21	-1 18 9 56 3 43	1 7 10 72 96 21
4 7 8 54 65 54	1 18 8 205 251 14	3 7 9 262 252 16	0 18 9 415 419 14	2 7 10 479 473 31

10

20

30

40

10

20

30

40

3 7 10	81	51	24	1 18 10	159	189	20	3 7 11	136	136	14	-2 19 11	76	67	20	-3 8 12	162	171	11
4 7 10	103	127	17	2 18 10	57	70	56	4 7 11	67	67	28	-1 19 11	156	153	19	-2 8 12	339	356	9
-4 8 10	0	30	1	3 18 10	88	96	21	-4 8 11	109	70	24	0 19 11	158	117	13	-1 8 12	457	456	16
-3 8 10	124	100	19	-2 19 10	168	164	10	-3 8 11	133	122	21	1 19 11	146	153	39	0 8 12	456	465	16
-2 8 10	300	301	9	-1 19 10	115	141	34	-2 8 11	216	171	33	2 19 11	76	67	76	1 8 12	453	455	20
-1 8 10	196	192	10	0 19 10	120	114	16	-1 8 11	141	125	11	-2 20 11	186	173	10	2 8 12	352	356	11
0 8 10	170	198	8	1 19 10	107	141	23	0 8 11	102	84	13	-1 20 11	127	145	15	3 8 12	182	171	10
1 8 10	176	195	13	2 19 10	139	164	16	1 8 11	127	126	14	0 20 11	179	199	21	4 8 12	96	122	23
2 8 10	329	301	12	-2 20 10	81	51	16	2 8 11	184	171	11	1 20 11	141	145	22	-4 9 12	120	123	19
3 8 10	94	100	21	-1 20 10	23	30	22	3 8 11	128	122	16	2 20 11	172	172	20	-3 9 12	0	16	1
4 8 10	33	30	32	0 20 10	41	26	41	4 8 11	87	70	20	-2 21 11	0	37	1	-2 9 12	84	65	13
-4 9 10	70	36	48	1 20 10	0	30	1	-4 9 11	96	58	23	-1 21 11	71	64	22	-1 9 12	472	445	17
-3 9 10	103	76	22	2 20 10	84	51	31	-3 9 11	219	212	27	0 21 11	0	82	1	0 9 12	146	143	11
-2 9 10	214	217	14	-2 21 10	0	19	1	-2 9 11	43	36	43	1 21 11	86	63	20	1 9 12	472	444	21
-1 9 10	203	194	10	-1 21 10	82	110	17	-1 9 11	123	124	13	-1 22 11	77	83	21	2 9 12	73	64	20
0 9 10	193	190	10	0 21 10	70	60	40	0 9 11	403	400	15	0 22 11	0	50	1	3 9 12	0	17	1
1 9 10	171	193	14	1 21 10	98	110	18	1 9 11	118	123	21	1 22 11	61	84	30	4 9 12	112	122	12
2 9 10	212	217	9	2 21 10	55	19	55	2 9 11	89	36	15	0 23 11	29	56	29	-4 10 12	87	92	29
3 9 10	96	77	21	-1 22 10	0	60	1	3 9 11	231	212	10	0 0 12	153	174	16	-3 10 12	43	14	42
4 9 10	65	36	36	0 22 10	27	4	27	4 9 11	82	59	21	1 0 12	968	1014	60	-2 10 12	96	110	12
-4 10 10	113	104	21	1 22 10	20	60	19	-4 10 11	143	113	25	2 0 12	112	91	11	-1 10 12	127	122	22
-3 10 10	153	167	31	0 23 10	77	52	26	-3 10 11	159	155	27	3 0 12	106	96	14	0 10 12	290	303	12
-2 10 10	92	78	17	1 0 11	445	488	22	-2 10 11	107	91	10	4 0 12	189	179	28	1 10 12	104	121	13
-1 10 10	265	269	12	2 0 11	27	40	26	-1 10 11	123	94	14	-4 1 12	142	125	38	2 10 12	121	110	12
0 10 10	575	595	20	3 0 11	142	133	23	0 10 11	625	576	22	-3 1 12	179	180	9	3 10 12	0	13	1
1 10 10	246	269	15	4 0 11	71	12	71	1 10 11	61	93	44	-2 1 12	159	145	11	4 10 12	102	91	12
2 10 10	84	78	18	-4 1 11	101	77	24	2 10 11	91	91	25	-1 1 12	353	403	12	-4 11 12	42	75	41
3 10 10	186	167	17	-3 1 11	0	22	1	3 10 11	173	154	15	0 1 12	265	308	9	-3 11 12	221	231	12
4 10 10	122	104	14	-2 1 11	280	275	13	4 10 11	108	113	16	1 1 12	339	404	14	-2 11 12	142	139	9
-4 11 10	119	100	20	-1 1 11	401	431	10	-4 11 11	84	78	31	2 1 12	157	145	21	-1 11 12	166	164	10
-3 11 10	106	113	16	0 1 11	352	391	11	-3 11 11	263	280	13	3 1 12	168	180	10	0 11 12	470	456	30
-2 11 10	128	120	9	1 1 11	387	431	12	-2 11 11	80	80	68	4 1 12	177	124	49	1 11 12	194	164	23
-1 11 10	141	136	15	2 1 11	285	274	20	-1 11 11	92	88	15	-4 2 12	153	147	18	2 11 12	147	138	11
0 11 10	316	295	13	3 1 11	66	22	44	0 11 11	478	494	21	-3 2 12	171	172	11	3 11 12	228	231	11
1 11 10	142	136	8	4 1 11	97	77	44	1 11 11	90	88	14	-2 2 12	267	279	13	4 11 12	78	75	20
2 11 10	121	120	13	-4 2 11	137	92	17	2 11 11	80	81	19	-1 2 12	463	535	24	-4 12 12	61	71	61
3 11 10	120	113	13	-3 2 11	203	199	16	3 11 11	277	281	12	0 2 12	103	143	8	-3 12 12	210	224	12
4 11 10	101	99	26	-2 2 11	235	233	12	4 11 11	46	78	46	1 2 12	458	535	17	-2 12 12	149	148	27
-4 12 10	51	98	51	-1 2 11	466	493	18	-3 12 11	79	68	23	2 2 12	277	279	20	-1 12 12	98	79	13
-3 12 10	101	121	17	0 2 11	28	42	28	-2 12 11	86	78	34	3 2 12	169	172	10	0 12 12	200	169	8
-2 12 10	89	84	15	1 2 11	435	492	14	-1 12 11	159	140	11	4 2 12	148	147	64	1 12 12	91	79	14
-1 12 10	214	221	9	2 2 11	245	232	19	0 12 11	0	15	1	-4 3 12	173	189	30	2 12 12	153	148	11
0 12 10	286	256	12	3 2 11	202	199	11	1 12 11	162	140	8	-3 3 12	136	132	16	3 12 12	223	224	11
1 12 10	216	221	8	4 2 11	0	92	1	2 12 11	94	78	17	-2 3 12	297	305	14	4 12 12	47	72	47
2 12 10	61	84	39	-4 3 11	199	181	31	3 12 11	99	69	16	-1 3 12	180	205	9	-3 13 12	0	56	1
3 12 10	122	121	13	-3 3 11	110	114	10	4 12 11	101	96	32	0 3 12	538	571	16	-2 13 12	97	117	17
4 12 10	103	98	16	-2 3 11	61	94	36	-3 13 11	214	231	27	1 3 12	166	205	9	-1 13 12	180	175	9
-4 13 10	80	110	35	-1 3 11	497	546	17	-2 13 11	59	67	30	2 3 12	298	305	22	0 13 12	160	147	8
-3 13 10	129	147	13	0 3 11	517	560	18	-1 13 11	12	43	11	3 3 12	138	132	10	1 13 12	180	175	8
-2 13 10	149	151	11	1 3 11	497	547	17	0 13 11	349	322	11	4 3 12	195	189	49	2 13 12	138	116	13
-1 13 10	167	141	9	2 3 11	109	94	26	1 13 11	64	43	21	-4 4 12	157	174	40	3 13 12	61	57	29
0 13 10	233	218	8	3 3 11	117	114	15	2 13 11	53	68	52	-3 4 12	54	35	27	-3 14 12	131	125	13
1 13 10	153	141	9	4 3 11	129	180	31	3 13 11	178	231	15	-2 4 12	193	175	16	-2 14 12	88	89	51
2 13 10	161	152	12	-4 4 11	189	185	20	-3 14 11	118	120	15	-1 4 12	297	318	19	-1 14 12	253	225	9
3 13 10	133	147	12	-3 4 11	134	128	9	-2 14 11	161	92	38	0 4 12	391	368	12	0 14 12	168	158	9
-3 14 10	68	84	30	-2 4 11	301	313	21	-1 14 11	144	126	10	1 4 12	295	318	13	1 14 12	248	224	10
-2 14 10	243	228	10	-1 4 11	511	542	21	0 14 11	0	15	1	2 4 12	166	174	23	2 14 12	84	88	23
-1 14 10	448	422	12	0 4 11	333	399	12	1 14 11	122	125	11	3 4 12	82	35	20	3 14 12	125	125	17
0 14 10	66	18	20	1 4 11	495	543	18	2 14 11	118	93	27	4 4 12	136	174	26	-3 15 12	62	29	34
1 14 10	442	423	13	2 4 11	323	314	21	3 14 11	113	119	13	-4 5 12	65	70	64	-2 15 12	106	109	20
2 14 10	251	227	12	3 4 11	119	128	14	-3 15 11	102	103	17	-3 5 12	154	143	11	-1 15 12	238	201	10
3 14 10	105	84	14	4 4 11	115	186	36	-2 15 11	267	275	10	-2 5 12	253	227	12	0 15 12	437	446	15
-3 15 10	0	23	1	-4 5 11	103	98	48	-1 15 11	188	179	10	-1 5 12	526	542	23	1 15 12	224	201	12
-2 15 10	31	9	30	-3 5 11	113	106	17	0 15 11	135	115	10	0 5 12	69	76	13	2 15 12	112	109	17
-1 15 10	230	216	10	-2 5 11	113	130	14	1 15 11	178	178	14	1 5 12	517	543	18	3 15 12	24	29	24
0 15 10	315	285	9	-1 5 11	776	806	29	2 15 11	276	275	12	2 5 12	222	226	23	-3 16 12	87	79	29
1 15 10	235	217	28	0 5 11	147	136	7	3 15 11	82	102	20	3 5 12	159	143	12	-2 16 12	150	114	21
2 15 10	21	9	21	1 5 11	755	807	33	-3 16 11	97	108	35	4 5 12	23	70	22	-1 16 12	89	117	23
3 15 10	51	23	51	2 5 11	61	130	61	-2 16 11	72	65	18	-4 6 12	145	157	22	0 16 12	69	52	25
-3 16 10	140	154	37	3 5 11	110	105	24	-1 16 11	211	195	9	-3 6 12	45	28	33	1 16 12	100	116	26
-2 16 10	76	95	18	4 5 11	85	98	49	0											

-1 20 12 166 209 13	-3 9 13 115 115 15	-1 22 13 94 91 24	4 9 14 152 135 16	-1 1 15 342 358 13
0 20 12 66 10 32	-2 9 13 231 238 8	0 22 13 80 16 21	-4 10 14 127 126 20	0 1 15 167 179 7
1 20 12 209 209 11	-1 9 13 459 462 17	0 0 14 522 680 32	-3 10 14 112 118 11	1 1 15 347 358 13
2 20 12 135 148 22	0 9 13 112 101 13	1 0 14 50 60 25	-2 10 14 0 25 1	2 1 15 457 437 20
-1 21 12 18 25 17	1 9 13 469 462 30	2 0 14 411 385 18	-1 10 14 248 261 11	3 1 15 241 227 19
0 21 12 64 72 36	2 9 13 241 238 9	3 0 14 42 63 41	0 10 14 223 213 9	4 1 15 107 107 14
1 21 12 0 25 1	3 9 13 135 115 12	4 0 14 26 29 25	1 10 14 246 261 9	-4 2 15 75 39 32
-1 22 12 5 50 5	4 9 13 48 46 47	-4 1 14 95 98 24	2 10 14 51 26 50	-3 2 15 195 199 15
0 22 12 120 127 14	-4 10 13 81 75 33	-3 1 14 178 161 11	3 10 14 106 117 16	-2 2 15 233 227 8
1 22 12 48 50 47	-3 10 13 17 26 17	-2 1 14 274 285 13	4 10 14 150 126 13	-1 2 15 218 230 9
1 0 13 32 72 32	-2 10 13 82 100 24	-1 1 14 86 95 12	-4 11 14 74 80 37	0 2 15 43 65 26
2 0 13 143 137 11	-1 10 13 106 96 25	0 1 14 215 260 7	-3 11 14 118 130 10	1 2 15 198 229 10
3 0 13 205 214 14	0 10 13 124 124 13	1 1 14 88 94 11	-2 11 14 61 84 32	2 2 15 265 227 14
4 0 13 125 86 25	1 10 13 111 96 11	2 1 14 265 285 13	-1 11 14 316 302 12	3 2 15 197 198 11
-4 1 13 186 158 25	2 10 13 107 100 13	3 1 14 186 161 11	0 11 14 242 238 11	4 2 15 65 40 64
-3 1 13 73 30 19	3 10 13 0 26 1	4 1 14 121 98 17	1 11 14 303 303 10	-4 3 15 137 157 18
-2 1 13 187 185 11	4 10 13 79 75 16	-4 2 14 91 84 26	2 11 14 105 84 15	-3 3 15 78 79 23
-1 1 13 176 202 9	-4 11 13 85 12 31	-3 2 14 133 104 20	3 11 14 116 131 14	-2 3 15 79 81 13
0 1 13 240 260 8	-3 11 13 182 180 9	-2 2 14 446 399 19	4 11 14 75 80 17	-1 3 15 521 505 18
1 1 13 165 203 9	-2 11 13 156 161 11	-1 2 14 161 159 10	-3 12 14 186 189 13	0 3 15 260 302 9
2 1 13 187 186 11	-1 11 13 322 306 8	0 2 14 350 385 11	-2 12 14 219 230 10	1 3 15 511 504 18
3 1 13 46 30 46	0 11 13 85 97 20	1 2 14 152 160 9	-1 12 14 64 37 34	2 3 15 79 81 10
4 1 13 164 158 46	1 11 13 302 305 12	2 2 14 434 399 20	0 12 14 140 140 15	3 3 15 81 79 39
-4 2 13 151 135 17	2 11 13 156 161 11	3 2 14 77 104 24	1 12 14 44 37 44	4 3 15 161 156 32
-3 2 13 159 141 16	3 11 13 180 181 11	4 2 14 73 83 31	2 12 14 206 230 12	-4 4 15 48 21 48
-2 2 13 428 406 19	4 11 13 41 12 41	-4 3 14 103 100 25	3 12 14 174 189 11	-3 4 15 132 139 13
-1 2 13 174 199 16	-4 12 13 106 95 46	-3 3 14 221 208 9	-3 13 14 0 35 1	-2 4 15 109 121 19
0 2 13 153 186 7	-3 12 13 178 181 24	-2 3 14 145 131 11	-2 13 14 233 193 10	-1 4 15 446 445 16
1 2 13 180 199 9	-2 12 13 36 32 35	-1 3 14 159 180 9	-1 13 14 43 25 42	0 4 15 12 30 11
2 2 13 427 406 28	-1 12 13 229 217 8	0 3 14 85 81 10	0 13 14 144 103 11	1 4 15 449 445 20
3 2 13 148 140 12	0 12 13 217 217 8	1 3 14 168 180 9	1 13 14 73 26 19	2 4 15 99 121 15
4 2 13 145 134 53	1 12 13 222 217 8	2 3 14 94 131 41	2 13 14 210 193 13	3 4 15 139 139 14
-4 3 13 101 70 24	2 12 13 37 33 36	3 3 14 226 208 11	3 13 14 52 35 52	4 4 15 58 22 46
-3 3 13 64 65 21	3 12 13 171 181 25	4 3 14 100 100 46	-3 14 14 61 55 37	-4 5 15 91 109 25
-2 3 13 508 488 23	-3 13 13 141 154 13	-4 4 14 83 15 28	-2 14 14 109 100 13	-3 5 15 221 184 19
-1 3 13 139 106 11	-2 13 13 103 105 19	-3 4 14 189 168 14	-1 14 14 0 27 1	-2 5 15 187 177 7
0 3 13 1000 1007 35	-1 13 13 88 60 16	-2 4 14 856 821 33	0 14 14 341 329 12	-1 5 15 325 315 14
1 3 13 125 106 9	0 13 13 166 161 9	-1 4 14 127 80 20	1 14 14 63 28 34	0 5 15 175 167 11
2 3 13 525 488 32	1 13 13 41 61 40	0 4 14 0 41 1	2 14 14 69 100 30	1 5 15 331 315 15
3 3 13 73 65 28	2 13 13 100 106 18	1 4 14 114 79 22	3 14 14 67 55 25	2 5 15 181 176 10
4 3 13 66 69 37	3 13 13 141 154 13	2 4 14 887 821 39	-3 15 14 30 35 30	3 5 15 197 182 12
-4 4 13 187 175 15	-3 14 13 129 119 14	3 4 14 173 168 12	-2 15 14 159 171 28	4 5 15 105 109 18
-3 4 13 65 64 26	-2 14 13 229 206 12	4 4 14 65 15 36	-1 15 14 138 127 11	-4 6 15 113 111 19
-2 4 13 237 222 17	-1 14 13 97 82 16	-4 5 14 124 87 22	0 15 14 50 2 50	-3 6 15 242 230 20
-1 4 13 293 300 12	0 14 13 60 30 28	-3 5 14 60 52 60	1 15 14 147 127 12	-2 6 15 334 328 9
0 4 13 501 497 15	1 14 13 103 82 15	-2 5 14 355 357 11	2 15 14 143 172 13	-1 6 15 0 47 1
1 4 13 301 299 13	2 14 13 216 206 12	-1 5 14 374 365 14	3 15 14 64 35 28	0 6 15 165 165 9
2 4 13 223 223 22	3 14 13 131 119 20	0 5 14 104 109 10	-3 16 14 118 123 17	1 6 15 62 45 31
3 4 13 81 64 25	-3 15 13 137 128 27	1 5 14 373 364 17	-2 16 14 83 91 16	2 6 15 350 328 14
4 4 13 159 176 38	-2 15 13 121 119 21	2 5 14 349 357 15	-1 16 14 93 75 19	3 6 15 227 230 10
-4 5 13 147 87 49	-1 15 13 154 110 13	3 5 14 43 51 42	0 16 14 315 315 13	4 6 15 89 111 16
-3 5 13 182 169 11	0 15 13 193 161 10	4 5 14 71 86 50	1 16 14 67 74 40	-4 7 15 79 87 33
-2 5 13 298 283 8	1 15 13 92 109 20	-4 6 14 91 113 29	2 16 14 83 91 21	-3 7 15 136 135 18
-1 5 13 160 168 9	2 15 13 107 119 18	-3 6 14 106 114 10	3 16 14 143 123 12	-2 7 15 68 66 22
0 5 13 58 79 17	3 15 13 111 127 15	-2 6 14 121 109 9	-3 17 14 112 125 55	-1 7 15 184 186 11
1 5 13 158 166 12	-3 16 13 65 58 52	-1 6 14 452 428 16	-2 17 14 139 137 12	0 7 15 107 115 12
2 5 13 295 281 17	-2 16 13 158 152 15	0 6 14 112 109 11	-1 17 14 83 61 18	1 7 15 210 185 29
3 5 13 167 170 12	-1 16 13 225 207 9	1 6 14 446 427 20	0 17 14 112 122 21	2 7 15 44 66 44
4 5 13 71 87 47	0 16 13 171 171 16	2 6 14 127 109 12	1 17 14 60 61 38	3 7 15 121 134 13
-4 6 13 17 21 17	1 16 13 196 207 14	3 6 14 115 115 15	2 17 14 128 138 18	4 7 15 62 88 22
-3 6 13 53 67 36	2 16 13 147 153 15	4 6 14 109 114 17	3 17 14 141 125 14	-4 8 15 109 123 21
-2 6 13 153 161 7	3 16 13 68 58 28	-4 7 14 103 93 22	-2 18 14 128 143 11	-3 8 15 267 309 11
-1 6 13 450 417 20	-3 17 13 119 107 20	-3 7 14 48 34 47	-1 18 14 76 101 20	-2 8 15 0 24 1
0 6 13 221 238 9	-2 17 13 110 128 12	-2 7 14 240 203 8	0 18 14 139 130 14	-1 8 15 191 182 15
1 6 13 452 417 20	-1 17 13 114 138 13	-1 7 14 112 101 13	1 18 14 110 102 15	0 8 15 191 210 10
2 6 13 157 162 18	0 17 13 0 69 1	0 7 14 189 209 9	2 18 14 100 142 51	1 8 15 193 181 19
3 6 13 52 66 51	1 17 13 122 138 15	1 7 14 102 100 17	-2 19 14 50 45 42	2 8 15 63 25 25
4 6 13 52 21 34	2 17 13 129 128 14	2 7 14 253 203 10	-1 19 14 195 212 11	3 8 15 295 308 11
-4 7 13 190 196 16	3 17 13 93 106 18	3 7 14 0 35 1	0 19 14 143 172 21	4 8 15 120 123 11
-3 7 13 27 62 27	-2 18 13 85 103 15	4 7 14 82 92 17	1 19 14 205 212 12	-4 9 15 57 59 57
-2 7 13 362 352 10	-1 18 13 171 144 25	-4 8 14 65 61 64	2 19 14 88 44 29	-3 9 15 198 200 9
-1 7 13 473 475 17	0 18 13 206 186 16	-3 8 14 94 77 13	-2 20 14 0 1 1	-2 9 15 180 179 8
0 7 13 376 357 14	1 18 13 131 144 14	-2 8 14 197 172 8	-1 20 14 101 90 21	-1 9 15 284 263 9
1 7 13 488 474 21	2 18 13 67 103 67	-1 8 14 0 19 1	0 20 14 0 5 1	0 9 15 501 486 18
2 7 13 372 352 11	-2 19 13 68 76 21	0 8 14 36 43 35	1 20 14 83 90 21	1 9 15 270 263 10
3 7 13 58 62 33	-1 19 13 109 116 13	1 8 14 62 119 62	2 20 14 55 2 55	2 9 15 173 180 10
4 7 13 199 197 11	0 19 13 209 223 35	2 8 14 205 172 9	-1 21 14 95 72 17	3 9 15 205 201 13
-4 8 13 91 68 29	1 19 13 120 116 14	3 8 14 160 77 32	0 21 14 0 6 1	4 9 15 41 59 41
-3 8 13 139 114 41	2 19 13 51 75 50	4 8 14 42 61 42	1 21 14 79 72 21	-4 10 15 76 60 36
-2 8 13 260 239 8	-2 20 13 0 51 1	-4 9 14 117 135 21	0 22 14 67 23 27	-3 10 15 23 17 23
-1 8 13 79 60 19	-1 20 13 71 42 22	-3 9 14 27 35 27	1 0 15 42 69 42	-2 10 15 198 198 15
0 8 13 141 134 10	0 20 13 63 58 37	-2 9 14 135 149 9	2 0 15 194 162 12	-1 10 15 246 227 7
1 8 13 81 60 23	1 20 13 78 42 59	-1 9 14 224 224 11	3 0 15 233 215 9	0 10 15 30 1 30
2 8 13 248 239 9	2 20 13 29 51 28	0 9 14 101 106 14	4 0 15 261 249 21	1 10 15 251 227 8
2 10 15 189 197 11	0 2 16 284 284 9	0 12 16 136 146 14	-1 4 17 264 247 12	-2 15 17 118 128 17
3 10 15 0 16 1	1 2 16 391 412 17	1 12 16 206 214 9	0 4 17 148 138 9	-1 15 17 108 71 14
4 10 15 62 60 22	2 2 16 292 314 11	2 12 16 151 83 49	1 4 17 264 247 13	0 15 17 47 12 47
-4 11 15 0 26 1	3 2 16 119 124 15	3 12 16 48 68 47	2 4 17 73 47 12	1 15 17 89 71 19
-3 11 15 109 91 11	4 2 16 57 52 56	-3 13 16 107 97 11	3 4 17 27 67 26	2 15 17 78 127 23
-2 11 15 79 84 21	-4 3 16 61 69 61	-2 13 16 238 241 14	4 4 17 95 121 20	3 15 17 0 51 1

10

20

30

40

-1 11 15	225	200	8	-3 3 16	150	154	13	-1 13 16	194	197	9	-4 5 17	0	23	1	-3 16 17	0	53	1
0 11 15	184	168	8	-2 3 16	375	368	10	0 13 16	259	266	12	-3 5 17	244	256	12	-2 16 17	184	208	23
1 11 15	223	200	8	-1 3 16	266	278	11	1 13 16	190	198	10	-2 5 17	185	177	8	-1 16 17	114	38	24
2 11 15	96	83	19	0 3 16	219	223	8	2 13 16	239	241	12	-1 5 17	156	166	16	0 16 17	99	48	23
3 11 15	73	91	21	1 3 16	265	277	13	3 13 16	102	97	15	0 5 17	715	711	31	1 16 17	79	38	23
-3 12 15	125	127	13	2 3 16	368	368	11	-3 14 16	126	115	14	1 5 17	150	166	13	2 16 17	153	207	19
-2 12 15	124	114	20	3 3 16	166	154	12	-2 14 16	137	152	14	2 5 17	183	176	9	-2 17 17	119	139	16
-1 12 15	171	169	13	4 3 16	75	68	19	-1 14 16	261	240	9	3 5 17	255	255	12	-1 17 17	141	137	10
0 12 15	233	215	10	-4 4 16	132	138	17	0 14 16	0	10	1	4 5 17	0	23	1	0 17 17	82	54	53
1 12 15	192	170	8	-3 4 16	88	107	20	1 14 16	257	239	12	-4 6 17	108	134	19	1 17 17	150	137	12
2 12 15	114	113	16	-2 4 16	199	198	9	2 14 16	136	152	14	-3 6 17	174	190	12	2 17 17	129	139	84
3 12 15	121	128	12	-1 4 16	420	415	16	3 14 16	91	115	17	-2 6 17	69	69	18	-2 18 17	146	148	15
-3 13 15	101	89	36	0 4 16	426	432	15	-3 15 16	62	40	62	-1 6 17	34	48	33	-1 18 17	48	54	48
-2 13 15	143	128	11	1 4 16	439	415	18	-2 15 16	87	107	26	0 6 17	127	128	17	0 18 17	0	40	1
-1 13 15	89	71	16	2 4 16	193	199	8	-1 15 16	172	142	10	1 6 17	74	49	25	1 18 17	39	55	38
0 13 15	185	163	10	3 4 16	104	108	18	0 15 16	0	15	1	2 6 17	79	69	28	2 18 17	170	149	17
1 13 15	94	72	18	4 4 16	124	138	18	1 15 16	155	141	13	3 6 17	176	190	10	-2 19 17	5	58	4
2 13 15	116	128	17	-4 5 16	76	41	31	2 15 16	96	107	21	4 6 17	139	135	22	-1 19 17	63	18	23
3 13 15	83	89	17	-3 5 16	223	216	14	3 15 16	57	40	38	-4 7 17	67	55	38	0 19 17	60	91	34
-3 14 15	87	91	21	-2 5 16	45	40	45	-3 16 16	38	49	37	-3 7 17	122	135	10	1 19 17	0	19	1
-2 14 15	238	263	12	-1 5 16	220	212	10	-2 16 16	133	120	21	-2 7 17	194	185	8	2 19 17	67	58	54
-1 14 15	226	210	9	0 5 16	39	19	39	-1 16 16	274	273	10	-1 7 17	106	116	16	-1 20 17	51	32	50
0 14 15	215	182	15	1 5 16	213	213	17	0 16 16	61	59	44	0 7 17	468	487	17	0 20 17	139	130	12
1 14 15	215	209	15	2 5 16	61	39	61	1 16 16	280	272	15	1 7 17	116	116	9	1 20 17	45	32	45
2 14 15	237	263	16	3 5 16	210	216	12	2 16 16	91	120	30	2 7 17	188	184	9	0 21 17	0	3	1
3 14 15	113	90	17	4 5 16	60	41	38	3 16 16	58	49	42	3 7 17	151	135	10	0 0 18	125	87	18
-3 15 15	76	54	32	-4 6 16	109	110	18	-2 17 16	85	97	15	4 7 17	33	55	32	1 0 18	64	78	23
-2 15 15	95	65	13	-3 6 16	290	283	13	-1 17 16	70	73	21	-4 8 17	50	69	50	2 0 18	225	235	7
-1 15 15	131	112	15	-2 6 16	115	116	11	0 17 16	0	7	1	-3 8 17	204	195	16	3 0 18	210	173	10
0 15 15	295	251	16	-1 6 16	349	355	13	1 17 16	85	74	20	-2 8 17	164	167	9	4 0 18	142	171	20
1 15 15	145	113	15	0 6 16	189	189	9	2 17 16	104	98	40	-1 8 17	181	166	16	-4 1 18	110	121	23
2 15 15	74	65	73	1 6 16	356	355	16	-2 18 16	18	21	17	0 8 17	193	193	15	-3 1 18	313	294	22
3 15 15	96	54	16	2 6 16	104	117	15	-1 18 16	90	119	14	1 8 17	177	165	8	-2 1 18	98	95	10
-3 16 15	118	102	20	3 6 16	302	283	14	0 18 16	115	109	14	2 8 17	180	167	9	-1 1 18	51	55	34
-2 16 15	180	224	22	4 6 16	109	111	21	1 18 16	100	119	17	3 8 17	216	195	10	0 1 18	139	126	9
-1 16 15	240	232	9	-4 7 16	47	67	47	2 18 16	0	21	1	4 8 17	40	69	39	1 1 18	77	55	33
0 16 15	43	18	43	-3 7 16	310	313	11	-2 19 16	74	97	19	-4 9 17	27	44	27	2 1 18	98	94	9
1 16 15	229	232	14	-2 7 16	175	171	8	-1 19 16	124	134	13	-3 9 17	288	308	12	3 1 18	303	295	12
2 16 15	187	224	31	-1 7 16	88	102	18	0 19 16	76	82	30	-2 9 17	54	69	51	4 1 18	126	121	12
3 16 15	97	102	17	0 7 16	158	176	10	1 19 16	158	135	18	-1 9 17	105	88	19	-4 2 18	120	135	31
-2 17 15	86	86	14	1 7 16	109	101	17	2 19 16	99	96	26	0 9 17	465	487	15	-3 2 18	185	176	17
-1 17 15	0	6	1	2 7 16	173	170	9	-1 20 16	82	78	19	1 9 17	104	89	11	-2 2 18	103	108	10
0 17 15	313	305	13	3 7 16	315	314	12	0 20 16	82	97	21	2 9 17	85	70	36	-1 2 18	189	202	10
1 17 15	46	6	46	4 7 16	53	67	28	1 20 16	71	78	36	3 9 17	305	308	14	0 2 18	769	776	27
2 17 15	54	86	54	-4 8 16	87	64	28	-1 21 16	23	24	22	4 9 17	43	44	42	1 2 18	196	202	12
-2 18 15	66	94	21	-3 8 16	223	232	9	0 21 16	0	16	1	-3 10 17	101	89	12	2 2 18	113	108	7
-1 18 15	98	112	13	-2 8 16	163	153	8	1 21 16	49	24	49	-2 10 17	121	124	13	3 2 18	190	176	9
0 18 15	269	277	22	-1 8 16	209	226	10	1 0 17	101	96	14	-1 10 17	178	177	9	4 2 18	146	135	14
1 18 15	123	112	14	0 8 16	205	204	10	2 0 17	274	268	8	0 10 17	147	205	17	-4 3 18	97	95	21
2 18 15	79	94	27	1 8 16	225	227	10	3 0 17	78	74	16	1 10 17	180	177	8	-3 3 18	249	218	16
-2 19 15	57	38	27	2 8 16	161	152	10	4 0 17	68	12	38	2 10 17	103	124	17	-2 3 18	239	247	8
-1 19 15	47	59	47	3 8 16	208	232	10	-4 1 17	136	156	26	3 10 17	72	88	24	-1 3 18	207	227	12
0 19 15	68	44	26	4 8 16	61	64	24	-3 1 17	58	59	27	-3 11 17	173	179	18	0 3 18	216	238	10
1 19 15	73	58	24	-4 9 16	59	69	58	-2 1 17	151	145	7	-2 11 17	88	28	19	1 3 18	202	226	12
2 19 15	0	37	1	-3 9 16	97	91	12	-1 1 17	193	190	13	-1 11 17	145	132	9	2 3 18	229	247	7
-2 20 15	161	108	35	-2 9 16	129	134	13	0 1 17	220	259	8	0 11 17	56	72	56	3 3 18	233	218	10
-1 20 15	92	104	16	-1 9 16	143	118	8	1 1 17	193	189	14	1 11 17	139	132	10	4 3 18	100	95	11
0 20 15	0	15	1	0 9 16	94	73	14	2 1 17	150	145	6	2 11 17	25	28	25	4 4 18	51	80	50
1 20 15	82	104	37	1 9 16	127	119	10	3 1 17	0	59	1	3 11 17	133	180	13	-3 4 18	174	145	12
-1 21 15	27	7	27	2 9 16	141	133	11	4 1 17	154	155	11	-3 12 17	73	56	28	-2 4 18	252	239	9
0 21 15	8	21	8	3 9 16	71	92	23	-4 2 17	223	243	22	-2 12 17	115	93	14	-1 4 18	283	293	14
1 21 15	34	6	34	4 9 16	70	69	26	-3 2 17	280	273	18	-1 12 17	132	114	11	0 4 18	172	167	9
0 22 15	31	24	31	-4 10 16	98	100	25	-2 2 17	120	105	9	0 12 17	35	30	34	1 4 18	278	292	15
0 0 16	163	155	11	-3 10 16	0	58	1	-1 2 17	127	145	11	1 12 17	111	113	14	2 4 18	234	239	9
1 0 16	259	267	11	-2 10 16	160	165	11	0 2 17	315	318	12	2 12 17	97	94	19	3 4 18	172	146	19
2 0 16	37	6	37	-1 10 16	98	56	13	1 2 17	118	145	39	3 12 17	81	57	18	4 4 18	62	81	61
3 0 16	32	57	31	0 10 16	291	295	12	2 2 17	104	106	8	-3 13 17	0	48	1	-4 5 18	53	54	52
4 0 16	157	198	31	1 10 16	72	57	17	3 2 17	296	274	11	-2 13 17	186	184	12	-3 5 18	144	153	12
-4 1 16	62	84	54	2 10 16	160	164	18	4 2 17	262	243	19	-1 13 17	419	404	13	-2 5 18	96	93	20
-3 1 16	71	63	19	3 10 16	84	59	19	-4 3 17	110	121	20	0 13 17	99	54	24	-1 5 18	182	197	11
-2 1 16	308	287	9	4 10 16	94	101	22	-3 3 17	213	183	31	1 13 17	433	403	17	0 5 18	271	283	17
-1 1 16	140	136	10	-3 11 16	84	99	14	-2 3 17	219	194	7	2 13 17							

2 7 18	103	106	14	-4 1 19	51	79	51	-1 11 19	212	230	8	-3 4 20	170	178	13	1 15 20	99	122	18
3 7 18	243	232	10	-3 1 19	266	268	17	0 11 19	116	91	19	-2 4 20	116	114	13	2 15 20	104	124	20
4 7 18	83	76	14	-2 1 19	80	71	22	1 11 19	240	230	11	-1 4 20	281	261	18	-2 16 20	99	78	23
-4 8 18	110	115	20	-1 1 19	42	71	42	2 11 19	138	158	20	0 4 20	80	33	40	-1 16 20	155	170	10
-3 8 18	172	156	25	0 1 19	205	231	12	3 11 19	101	106	14	1 4 20	276	261	10	0 16 20	211	253	13
-2 8 18	270	227	10	1 1 19	95	71	18	-3 12 19	75	79	16	2 4 20	119	114	13	1 16 20	157	170	15
-1 8 18	174	150	10	2 1 19	91	71	10	-2 12 19	202	183	9	3 4 20	208	179	16	2 16 20	74	77	73
0 8 18	351	339	12	3 1 19	267	269	11	-1 12 19	314	301	10	4 4 20	89	113	16	-2 17 20	62	55	25
1 8 18	181	151	8	4 1 19	89	79	17	0 12 19	209	180	13	-4 5 20	113	96	19	-1 17 20	45	64	44
2 8 18	257	227	17	-4 2 19	69	30	33	1 12 19	312	301	12	-3 5 20	133	138	13	0 17 20	59	87	59
3 8 18	139	156	14	-3 2 19	298	256	22	2 12 19	148	183	13	-2 5 20	259	233	13	1 17 20	61	64	32
4 8 18	117	116	25	-2 2 19	105	103	11	3 12 19	76	79	19	-1 5 20	141	130	12	2 17 20	81	55	80
-3 9 18	66	60	20	-1 2 19	86	94	16	-3 13 19	154	148	17	0 5 20	174	154	13	-2 18 20	59	46	31
-2 9 18	87	65	23	0 2 19	504	514	22	-2 13 19	126	136	20	1 5 20	118	130	10	-1 18 20	17	67	16
-1 9 18	210	178	8	1 2 19	84	94	22	-1 13 19	89	88	18	2 5 20	251	233	10	0 18 20	32	9	31
0 9 18	0	38	1	2 2 19	113	103	11	0 13 19	0	56	1	3 5 20	141	138	9	1 18 20	0	67	1
1 9 18	195	179	8	3 2 19	274	256	11	1 13 19	107	88	17	4 5 20	86	96	14	-1 19 20	108	80	12
2 9 18	52	64	52	4 2 19	36	32	36	2 13 19	91	136	17	-4 6 20	58	86	57	0 19 20	23	13	22
3 9 18	71	59	20	-4 3 19	96	115	20	3 13 19	120	148	13	-3 6 20	79	90	19	1 19 20	61	80	60
-3 10 18	184	180	8	-3 3 19	270	277	14	-3 14 19	94	96	24	-2 6 20	105	95	15	0 20 20	42	75	42
-2 10 18	147	140	12	-2 3 19	70	76	17	-2 14 19	144	133	19	-1 6 20	94	77	13	1 0 21	0	49	1
-1 10 18	96	83	14	-1 3 19	191	205	10	-1 14 19	202	216	9	0 6 20	123	123	12	2 0 21	44	18	43
0 10 18	307	295	12	0 3 19	248	244	20	0 14 19	499	461	20	1 6 20	124	76	15	3 0 21	75	75	21
1 10 18	83	84	23	1 3 19	190	205	18	1 14 19	192	215	12	2 6 20	109	95	13	4 0 21	0	37	1
2 10 18	143	141	13	2 3 19	69	77	12	2 14 19	120	134	15	3 6 20	68	91	50	-4 1 21	52	46	52
3 10 18	142	181	11	3 3 19	297	278	11	3 14 19	56	96	35	4 6 20	92	86	18	-3 1 21	95	96	40
-3 11 18	97	57	12	4 3 19	121	116	10	-3 15 19	98	91	67	-4 7 20	153	117	27	-2 1 21	185	180	8
-2 11 18	66	63	28	-4 4 19	70	40	30	-2 15 19	184	175	17	-3 7 20	97	84	15	-1 1 21	96	67	29
-1 11 18	143	136	10	-3 4 19	193	183	12	-1 15 19	39	12	38	-2 7 20	38	57	38	0 1 21	315	327	11
0 11 18	51	7	50	-2 4 19	165	156	10	0 15 19	356	321	15	-1 7 20	116	108	11	1 1 21	80	66	23
1 11 18	131	135	10	-1 4 19	210	209	28	1 15 19	66	12	30	0 7 20	216	197	13	2 1 21	178	181	7
2 11 18	22	63	21	0 4 19	166	144	12	2 15 19	173	175	48	1 7 20	105	109	12	3 1 21	111	97	14
3 11 18	66	57	36	1 4 19	232	209	9	3 15 19	73	90	26	2 7 20	17	57	16	4 1 21	88	46	22
-3 12 18	82	63	14	2 4 19	164	156	6	-2 16 19	81	93	24	3 7 20	73	84	20	-4 2 21	106	133	23
-2 12 18	179	177	13	3 4 19	207	183	9	-1 16 19	62	33	34	4 7 20	103	117	17	-3 2 21	210	218	12
-1 12 18	126	126	11	4 4 19	0	40	1	0 16 19	300	288	28	-3 8 20	85	93	15	-2 2 21	11	31	11
0 12 18	101	75	18	-4 5 19	43	52	43	1 16 19	54	33	53	-2 8 20	165	139	16	-1 2 21	40	89	40
1 12 18	139	127	16	-3 5 19	73	70	23	2 16 19	87	94	75	-1 8 20	207	216	8	0 2 21	92	74	14
2 12 18	161	177	12	-2 5 19	258	253	8	-2 17 19	52	69	51	0 8 20	86	83	16	1 2 21	90	88	13
3 12 18	42	63	41	-1 5 19	142	123	10	-1 17 19	0	6	1	1 8 20	212	215	11	2 2 21	53	31	21
-3 13 18	62	69	41	0 5 19	0	59	1	0 17 19	105	94	18	2 8 20	140	139	12	3 2 21	206	218	24
-2 13 18	198	198	11	1 5 19	129	123	9	1 17 19	0	6	1	3 8 20	67	93	20	4 2 21	122	133	10
-1 13 18	282	267	10	2 5 19	256	253	9	2 17 19	82	69	34	-3 9 20	118	109	10	-4 3 21	97	99	22
0 13 18	105	104	21	3 5 19	48	70	47	-2 18 19	0	26	1	-2 9 20	178	168	10	-3 3 21	104	107	29
1 13 18	289	267	13	4 5 19	73	52	27	-1 18 19	0	5	1	-1 9 20	274	263	9	-2 3 21	137	126	11
2 13 18	152	198	13	-4 6 19	70	67	38	0 18 19	173	164	11	0 9 20	35	25	34	-1 3 21	71	63	19
3 13 18	70	70	22	-3 6 19	101	131	16	1 18 19	41	5	41	1 9 20	270	264	9	0 3 21	177	170	15
-3 14 18	66	62	43	-2 6 19	135	140	10	2 18 19	53	26	53	2 9 20	145	169	13	1 3 21	91	64	22
-2 14 18	76	81	29	-1 6 19	271	277	13	-1 19 19	57	71	35	3 9 20	68	108	20	2 3 21	131	125	7
-1 14 18	179	162	10	0 6 19	488	460	23	0 19 19	71	86	24	-3 10 20	101	85	22	3 3 21	91	107	16
0 14 18	250	224	13	1 6 19	277	277	9	1 19 19	60	71	59	-2 10 20	95	71	17	4 3 21	109	99	10
1 14 18	177	162	14	2 6 19	127	140	12	-1 20 19	97	107	13	-1 10 20	163	141	10	-4 4 21	0	54	1
2 14 18	68	81	26	3 6 19	131	131	11	0 20 19	88	82	22	0 10 20	144	145	23	-3 4 21	34	49	33
3 14 18	64	62	26	4 6 19	59	67	32	1 20 19	90	106	39	1 10 20	161	141	10	-2 4 21	165	152	11
-3 15 18	66	104	47	-4 7 19	184	177	19	0 0 20	468	470	30	2 10 20	70	71	28	-1 4 21	115	97	15
-2 15 18	240	264	19	-3 7 19	101	102	15	1 0 20	136	119	18	3 10 20	94	85	19	0 4 21	71	61	21
-1 15 18	116	108	17	-2 7 19	242	228	10	2 0 20	230	227	8	-3 11 20	83	67	15	1 4 21	116	97	11
0 15 18	156	131	15	-1 7 19	181	169	7	3 0 20	321	299	14	-2 11 20	70	64	23	2 4 21	163	152	7
1 15 18	131	107	16	0 7 19	102	93	13	4 0 20	0	38	1	-1 11 20	105	113	17	3 4 21	68	49	21
2 15 18	254	263	23	1 7 19	161	168	10	-4 1 20	87	70	26	0 11 20	234	234	14	4 4 21	61	54	20
3 15 18	90	104	17	2 7 19	229	228	10	-3 1 20	160	138	17	1 11 20	129	114	13	-4 5 21	39	40	39
-2 16 18	108	96	16	3 7 19	100	101	16	-2 1 20	76	74	15	2 11 20	68	63	26	-3 5 21	104	122	14
-1 16 18	118	115	12	4 7 19	181	177	11	-1 1 20	108	101	14	3 11 20	61	67	25	-2 5 21	86	98	19
0 16 18	168	183	14	-4 8 19	138	153	17	0 1 20	310	319	15	-3 12 20	99	119	13	-1 5 21	347	332	10
1 16 18	90	116	27	-3 8 19	61	46	21	1 1 20	130	102	11	-2 12 20	183	201	14	0 5 21	94	55	26
2 16 18	84	96	24	-2 8 19	93	89	17	2 1 20	101	73	15	-1 12 20	23	29	23	1 5 21	346	332	12
-2 17 18	88	82	14	-1 8 19	109	73	12	3 1 20	173	139	11	0 12 20	229	207	13	2 5 21	96	98	10
-1 17 18	135	128	11	0 8 19	218	211	14	4 1 20	62	70	41	1 12 20	27	29	26	3 5 21	99	123	11
0 17 18	259	279	29	1 8 19	101	73	14	-4 2 20	57	35	56	2 12 20	175	201	16	4 5 21	22	40	22
1 17 18	121	127	17	2 8 19	73	89	22	-3 2 20	185	181	24	3 12 20	94	119	14	-3 6 21	92	108	16
2 17 18	109	82	27	3 8 19	51	46	34	-2 2 20	144	148	9	-3 13 20	179	177	12	-2 6 21	164	136	11
-2 18 18	67	36	21	-3 9 19	96	89	13	-1 2 20	132	114	16	-2 13 20	0	45	1	-1 6 21	123		

-3 9 21 150 159 13	-2 3 22 89 85 21	2 15 22 305 318 17	1 10 23 74 12 49	1 6 24 122 110 17
-2 9 21 241 213 10	-1 3 22 124 99 11	-2 16 22 34 29 34	2 10 23 82 77 20	2 6 24 138 112 13
-1 9 21 174 127 9	0 3 22 162 174 9	-1 16 22 115 110 12	3 10 23 81 84 22	3 6 24 0 18 1
0 9 21 155 152 11	1 3 22 105 98 13	0 16 22 125 114 16	-3 11 23 108 114 34	-3 7 24 67 69 24
1 9 21 151 126 11	2 3 22 97 85 18	1 16 22 146 110 17	-2 11 23 29 17 29	-2 7 24 91 81 15
2 9 21 195 212 13	3 3 22 92 112 14	2 16 22 59 29 59	-1 11 23 206 176 9	-1 7 24 130 111 15
3 9 21 133 159 11	4 3 22 100 96 16	-2 17 22 100 109 23	0 11 23 108 83 40	0 7 24 154 165 10
-3 10 21 92 81 13	-4 4 22 61 37 61	-1 17 22 118 143 11	1 11 23 202 176 12	1 7 24 104 111 17
-2 10 21 110 77 14	-3 4 22 59 59 28	0 17 22 35 33 35	2 11 23 0 17 1	2 7 24 70 80 26
-1 10 21 210 190 9	-2 4 22 114 102 14	1 17 22 177 143 14	3 11 23 114 114 18	3 7 24 76 69 16
0 10 21 46 60 46	-1 4 22 75 70 26	-1 18 22 35 54 35	-3 12 23 78 78 15	-3 8 24 51 52 51
1 10 21 224 190 12	0 4 22 85 60 17	0 18 22 0 63 1	-2 12 23 137 139 11	-2 8 24 142 145 12
2 10 21 55 77 55	1 4 22 68 70 20	1 18 22 60 54 59	-1 12 23 345 336 11	-1 8 24 170 152 11
3 10 21 49 81 49	2 4 22 86 102 13	-1 19 22 0 9 1	0 12 23 126 122 20	0 8 24 85 72 21
-3 11 21 44 18 43	3 4 22 0 60 1	0 19 22 24 13 23	1 12 23 362 336 24	1 8 24 174 152 29
-2 11 21 91 100 19	-3 5 22 98 86 15	1 0 23 84 17 17	2 12 23 151 139 12	2 8 24 150 145 14
-1 11 21 62 47 30	-2 5 22 50 41 49	2 0 23 175 163 9	3 12 23 63 78 30	3 8 24 59 51 25
0 11 21 424 384 21	-1 5 22 297 271 15	3 0 23 73 22 43	-2 13 23 95 107 15	-3 9 24 40 19 40
1 11 21 0 47 1	0 5 22 31 38 30	-4 1 23 78 72 77	-1 13 23 304 282 9	-2 9 24 80 105 80
2 11 21 99 100 15	1 5 22 288 271 11	-3 1 23 99 101 43	0 13 23 223 229 15	-1 9 24 102 86 15
3 11 21 41 19 41	2 5 22 55 40 21	-2 1 23 114 112 12	1 13 23 283 282 35	0 9 24 126 97 21
-3 12 21 43 26 42	3 5 22 67 86 20	-1 1 23 103 92 24	2 13 23 119 107 18	1 9 24 128 85 22
-2 12 21 43 51 43	-3 6 22 108 109 16	0 1 23 66 102 54	-2 14 23 103 105 14	2 9 24 108 105 20
-1 12 21 69 67 35	-2 6 22 51 41 50	1 1 23 117 93 12	-1 14 23 131 143 21	3 9 24 0 18 1
0 12 21 124 120 17	-1 6 22 22 49 21	2 1 23 119 112 11	0 14 23 74 78 30	-3 10 24 87 103 29
1 12 21 96 67 27	0 6 22 230 213 8	3 1 23 100 101 14	1 14 23 128 142 19	-2 10 24 105 122 14
2 12 21 43 50 43	1 6 22 80 49 33	4 1 23 124 71 28	2 14 23 125 105 18	-1 10 24 197 168 12
3 12 21 26 26 25	2 6 22 0 41 1	-3 2 23 60 51 30	-2 15 23 63 76 24	0 10 24 205 179 18
-3 13 21 45 60 45	3 6 22 112 109 11	-2 2 23 232 221 15	-1 15 23 97 115 21	1 10 24 192 167 12
-2 13 21 123 116 20	-3 7 22 0 20 1	-1 2 23 225 229 19	0 15 23 121 130 16	2 10 24 100 122 45
-1 13 21 178 164 10	-2 7 22 119 135 14	0 2 23 110 94 10	1 15 23 114 115 22	3 10 24 102 103 22
0 13 21 268 241 13	-1 7 22 275 265 9	1 2 23 240 229 9	2 15 23 77 76 41	-3 11 24 13 7 12
1 13 21 178 164 17	0 7 22 225 236 8	2 2 23 213 221 9	-2 16 23 99 94 21	-2 11 24 112 111 13
2 13 21 108 116 15	1 7 22 263 266 10	3 2 23 7 52 7	-1 16 23 40 30 40	-1 11 24 112 117 14
3 13 21 73 61 21	2 7 22 131 135 13	-3 3 23 96 95 16	0 16 23 122 142 16	0 11 24 212 204 15
-2 14 21 90 78 15	3 7 22 21 20 20	-2 3 23 59 76 34	1 16 23 76 30 37	1 11 24 125 118 25
-1 14 21 78 75 20	-3 8 22 99 103 15	-1 3 23 61 66 29	2 16 23 119 94 17	2 11 24 80 111 33
0 14 21 41 87 40	-2 8 22 47 40 46	0 3 23 294 260 13	-1 17 23 79 107 17	3 11 24 67 7 23
1 14 21 65 75 29	-1 8 22 171 139 9	1 3 23 92 65 17	0 17 23 57 42 56	-2 12 24 63 58 26
2 14 21 98 78 21	0 8 22 163 159 20	2 3 23 91 77 13	1 17 23 93 107 24	-1 12 24 126 81 23
-2 15 21 93 67 15	1 8 22 150 138 13	3 3 23 108 94 12	-1 18 23 0 9 1	0 12 24 54 74 53
-1 15 21 71 71 22	2 8 22 68 40 28	-3 4 23 52 16 45	0 18 23 30 54 29	1 12 24 109 80 15
0 15 21 106 118 20	3 8 22 77 104 16	-2 4 23 173 156 10	1 18 23 0 9 1	2 12 24 60 58 59
1 15 21 73 71 40	-3 9 22 110 104 23	-1 4 23 99 83 34	0 19 23 0 75 1	-2 13 24 124 130 12
2 15 21 89 67 88	-2 9 22 200 176 10	0 4 23 122 124 9	0 0 24 115 82 27	-1 13 24 275 287 9
-2 16 21 76 71 37	-1 9 22 99 103 17	1 4 23 104 83 13	1 0 24 315 301 13	0 13 24 70 57 46
-1 16 21 65 84 24	0 9 22 112 95 17	2 4 23 149 156 12	2 0 24 128 110 10	1 13 24 266 287 34
0 16 21 22 46 21	1 9 22 130 102 13	3 4 23 0 16 1	3 0 24 32 69 31	2 13 24 141 130 15
1 16 21 94 84 19	2 9 22 163 176 13	-3 5 23 61 66 29	-3 1 24 68 70 23	-2 14 24 48 16 47
2 16 21 83 70 27	3 9 22 93 103 15	-2 5 23 164 165 9	-2 1 24 237 215 11	-1 14 24 152 138 17
-2 17 21 90 78 16	-3 10 22 218 222 13	-1 5 23 219 183 16	-1 1 24 171 84 58	0 14 24 42 46 42
-1 17 21 95 112 14	-2 10 22 205 206 11	0 5 23 64 76 20	0 1 24 31 37 30	1 14 24 137 138 20
0 17 21 76 38 27	-1 10 22 58 34 36	1 5 23 205 182 9	1 1 24 114 84 13	2 14 24 78 16 30
1 17 21 129 112 18	0 10 22 63 25 62	2 5 23 156 164 12	2 1 24 230 216 11	-2 15 24 105 91 18
2 17 21 113 78 22	1 10 22 57 35 56	3 5 23 60 66 24	3 1 24 38 70 37	-1 15 24 167 203 11
-1 18 21 73 61 19	2 10 22 166 206 12	-3 6 23 82 69 19	-3 2 24 82 70 19	0 15 24 218 194 14
0 18 21 53 20 52	3 10 22 168 222 15	-2 6 23 122 111 12	-2 2 24 271 286 10	1 15 24 222 203 14
1 18 21 46 61 45	-3 11 22 186 172 14	-1 6 23 134 123 11	-1 2 24 119 115 28	2 15 24 131 91 16
-1 19 21 25 17 24	-2 11 22 181 191 12	0 6 23 318 291 9	0 2 24 49 4 32	-2 16 24 81 27 80
0 19 21 135 143 18	-1 11 22 235 228 10	1 6 23 133 123 11	1 2 24 125 116 14	-1 16 24 61 75 44
1 19 21 50 17 49	0 11 22 367 323 19	2 6 23 105 111 17	2 2 24 271 287 14	0 16 24 0 18 1
0 20 21 109 48 28	1 11 22 253 228 11	3 6 23 48 70 47	3 2 24 73 70 18	1 16 24 74 75 34
0 0 22 390 413 19	2 11 22 170 190 15	-3 7 23 45 16 45	-3 3 24 0 47 1	-1 17 24 104 98 13
1 0 22 41 23 40	3 11 22 146 172 12	-2 7 23 118 122 12	-2 3 24 80 37 21	0 17 24 36 57 35
2 0 22 230 213 10	-3 12 22 38 64 37	-1 7 23 162 146 9	-1 3 24 344 300 20	1 17 24 87 99 24
3 0 22 210 222 23	-2 12 22 80 66 18	0 7 23 63 48 26	0 3 24 89 73 13	-1 18 24 54 56 53
4 0 22 72 84 71	-1 12 22 81 94 20	1 7 23 161 145 14	1 3 24 324 300 12	0 18 24 0 52 1
-4 1 22 94 67 20	0 12 22 14 50 13	2 7 23 120 122 14	2 3 24 27 37 26	1 0 25 122 111 15
-3 1 22 140 162 63	1 12 22 127 95 14	3 7 23 0 16 1	3 3 24 41 47 41	2 0 25 82 34 18
-2 1 22 129 128 10	2 12 22 57 66 36	-3 8 23 78 53 28	-3 4 24 71 70 24	3 0 25 200 195 17
-1 1 22 132 125 10	3 12 22 56 64 31	-2 8 23 63 22 24	-2 4 24 134 124 11	-3 1 25 105 95 14
0 1 22 273 267 13	-3 13 22 62 73 21	-1 8 23 51 37 51	-1 4 24 0 29 1	-2 1 25 202 164 9
1 1 22 111 126 20	-2 13 22 126 163 12	0 8 23 153 138 12	0 4 24 283 280 8	-1 1 25 96 78 21
2 1 22 135 128 9	-1 13 22 227 225 9	1 8 23 90 37 19	1 4 24 66 28 25	0 1 25 98 111 13
3 1 22 141 162 11	0 13 22 88 80 25	2 8 23 45 22 44	2 4 24 136 124 10	1 1 25 103 78 17
2 1 25 179 164 18	0 15 25 86 64 32	2 11 26 103 99 20	2 9 27 135 153 19	2 8 28 97 78 17
3 1 25 100 95 16	1 15 25 150 162 18	-2 12 26 79 78 20	-2 10 27 51 59 51	-2 9 28 55 73 39
-3 2 25 0 9 1	2 15 25 30 21 29	-1 12 26 158 164 10	-1 10 27 167 139 13	-1 9 28 46 54 45
-2 2 25 60 14 50	-1 16 25 31 46 31	0 12 26 124 120 19	0 10 27 54 60 53	0 9 28 0 33 1
-1 2 25 227 206 13	0 16 25 148 190 22	1 12 26 166 164 14	1 10 27 128 140 18	1 9 28 56 55 56
0 2 25 61 36 21	1 16 25 59 45 58	2 12 26 107 78 23	2 10 27 86 59 23	2 9 28 99 73 16
1 2 25 224 206 14	-1 17 25 61 49 24	-2 13 26 110 97 14	-2 11 27 49 69 49	-2 10 28 74 81 21
2 2 25 45 14 45	0 17 25 0 30 1	-1 13 26 0 35 1	-1 11 27 106 106 14	-1 10 28 76 34 22
3 2 25 47 10 47	1 17 25 30 49 29	0 13 26 101 111 22	0 11 27 52 92 52	0 10 28 95 97 27
-3 3 25 45 39 44	0 18 25 0 22 1	1 13 26 37 35 37	1 11 27 110 105 26	1 10 28 50 35 50
-2 3 25 101 65 15	0 0 26 167 153 14	2 13 26 115 97 18	2 11 27 84 68 26	2 10 28 72 81 33
-1 3 25 91 91 31	1 0 26 101 36 24	-2 14 26 28 34 27	-2 12 27 86 125 36	-2 11 28 61 48 30
0 3 25 70 5 18	2 0 26 146 116 15	-1 14 26 43 39 43	-1 12 27 94 111 16	-1 11 28 95 101 28
1 3 25 110 92 21	3 0 26 78 35 67	0 14 26 92 47 25	0 12 27 59 6 59	0 11 28 194 168 50
2 3 25 51 65 36	-3 1 26 56 48 29	1 14 26 30 39 29	1 12 27 108 110 19	1 11 28 64 100 41

10

20

30

40

10

20

30

40

3	3	25	0	38	1	-2	1	26	76	80	20	2	14	26	0	35	1	2	12	27	119	125	17	2	11	28	46	48	46
-3	4	25	84	90	33	-1	1	26	79	43	35	-1	15	26	74	57	19	-2	13	27	0	53	1	-2	12	28	45	20	44
-2	4	25	57	44	31	0	1	26	324	319	10	0	15	26	132	124	17	-1	13	27	0	35	1	-1	12	28	60	35	30
-1	4	25	185	172	15	1	1	26	82	43	40	1	15	26	69	57	38	0	13	27	197	213	15	0	12	28	167	159	16
0	4	25	272	278	9	2	1	26	91	81	15	-1	16	26	0	51	1	1	13	27	54	36	53	1	12	28	67	36	48
1	4	25	175	172	12	3	1	26	46	49	46	0	16	26	58	66	58	2	13	27	78	53	77	2	12	28	0	20	1
2	4	25	54	45	27	-3	2	26	119	132	13	1	16	26	53	51	52	-1	14	27	56	65	31	-2	13	28	52	66	52
3	4	25	85	90	15	-2	2	26	141	132	12	0	17	26	0	17	1	0	14	27	60	31	60	-1	13	28	114	133	13
-3	5	25	0	11	1	-1	2	26	159	105	15	1	0	27	104	67	24	1	14	27	0	65	1	0	13	28	57	7	57
-2	5	25	118	114	12	0	2	26	146	129	10	2	0	27	198	166	13	-1	15	27	91	76	15	1	13	28	99	133	24
-1	5	25	83	101	31	1	2	26	126	104	20	3	0	27	74	56	19	0	15	27	52	17	52	-1	14	28	84	55	18
0	5	25	171	175	9	2	2	26	141	132	13	-3	1	27	124	125	12	1	15	27	78	76	28	0	14	28	68	67	43
1	5	25	89	101	24	3	2	26	117	133	11	-2	1	27	135	127	11	-1	16	27	28	22	27	1	14	28	63	55	45
2	5	25	135	114	13	-3	3	26	81	51	19	-1	1	27	124	129	20	0	16	27	110	119	27	-1	15	28	130	131	12
3	5	25	32	11	32	-2	3	26	68	79	22	0	1	27	136	123	11	1	16	27	38	23	38	0	15	28	0	25	1
-3	6	25	101	68	24	-1	3	26	120	91	22	1	1	27	142	129	18	0	0	28	376	331	19	1	15	28	117	132	17
-2	6	25	146	155	10	0	3	26	82	51	15	2	1	27	155	127	18	1	0	28	132	99	21	0	16	28	0	31	1
-1	6	25	104	89	20	1	3	26	125	91	21	3	1	27	141	125	12	2	0	28	49	36	49	1	0	29	227	220	29
0	6	25	107	83	16	2	3	26	80	79	16	-3	2	27	103	106	13	3	0	28	71	71	19	2	0	29	87	76	15
1	6	25	122	88	14	3	3	26	0	51	1	-2	2	27	106	87	15	-3	1	28	102	106	13	3	0	29	59	59	26
2	6	25	128	154	14	-3	4	26	146	112	20	-1	2	27	79	66	36	-2	1	28	97	67	24	-3	1	29	52	54	51
3	6	25	77	69	17	-2	4	26	102	64	13	0	2	27	126	122	13	-1	1	28	175	128	15	-2	1	29	135	139	24
-3	7	25	151	150	11	-1	4	26	181	168	15	1	2	27	132	66	27	0	1	28	50	17	50	-1	1	29	110	51	20
-2	7	25	136	111	12	0	4	26	78	62	26	2	2	27	107	87	14	1	1	28	130	128	20	0	1	29	37	28	36
-1	7	25	89	41	24	1	4	26	161	168	16	3	2	27	112	107	14	2	1	28	69	67	21	1	1	29	74	51	36
0	7	25	46	66	46	2	4	26	61	64	22	-3	3	27	168	152	15	3	1	28	132	106	12	2	1	29	124	140	10
1	7	25	96	42	35	3	4	26	107	113	13	-2	3	27	135	139	11	-3	2	28	108	116	13	3	1	29	87	54	20
2	7	25	127	111	14	-3	5	26	84	69	18	-1	3	27	229	239	14	-2	2	28	118	118	12	-3	2	29	109	104	12
3	7	25	130	150	10	-2	5	26	166	151	10	0	3	27	98	100	27	-1	2	28	129	127	31	-2	2	29	126	88	14
-3	8	25	49	60	49	-1	5	26	109	42	23	1	3	27	226	240	30	0	2	28	70	11	27	-1	2	29	301	291	33
-2	8	25	104	91	15	0	5	26	13	5	13	2	3	27	116	140	13	1	2	28	151	126	16	0	2	29	120	99	17
-1	8	25	191	203	11	1	5	26	86	42	32	3	3	27	143	151	11	2	2	28	107	117	12	1	2	29	252	291	26
0	8	25	26	43	26	2	5	26	151	150	17	-3	4	27	66	56	25	3	2	28	139	117	12	2	2	29	90	88	13
1	8	25	200	202	15	3	5	26	70	69	20	-2	4	27	110	112	15	-3	3	28	73	42	18	3	2	29	126	104	14
2	8	25	101	91	16	-3	6	26	70	26	22	-1	4	27	49	43	49	-2	3	28	184	168	13	-3	3	29	114	124	12
3	8	25	80	59	18	-2	6	26	0	31	1	0	4	27	310	274	12	-1	3	28	112	84	40	-2	3	29	70	42	27
-3	9	25	0	35	1	-1	6	26	195	185	15	1	4	27	0	43	1	0	3	28	118	105	15	-1	3	29	62	38	61
-2	9	25	20	45	20	0	6	26	127	131	14	2	4	27	133	113	19	1	3	28	103	83	22	0	3	29	297	282	11
-1	9	25	200	188	10	1	6	26	183	184	15	3	4	27	63	56	24	2	3	28	175	168	14	1	3	29	55	39	55
0	9	25	153	164	26	2	6	26	6	31	5	-3	5	27	0	41	1	3	3	28	44	42	43	2	3	29	0	41	1
1	9	25	208	188	21	3	6	26	0	26	1	-2	5	27	102	67	18	-3	4	28	179	161	10	3	3	29	113	124	15
2	9	25	65	44	29	-3	7	26	39	25	38	-1	5	27	191	175	16	-2	4	28	106	119	21	-3	4	29	50	73	50
3	9	25	72	34	71	-2	7	26	86	59	19	0	5	27	69	18	29	-1	4	28	150	182	17	-2	4	29	53	60	53
-3	10	25	68	73	34	-1	7	26	189	165	12	1	5	27	192	174	32	0	4	28	459	389	15	-1	4	29	94	90	25
-2	10	25	24	37	23	0	7	26	51	25	50	2	5	27	64	67	62	1	4	28	168	182	14	0	4	29	84	62	22
-1	10	25	132	115	12	1	7	26	167	165	16	3	5	27	16	41	16	2	4	28	157	119	23	1	4	29	113	90	18
0	10	25	101	79	27	2	7	26	86	60	19	-3	6	27	51	36	50	3	4	28	158	161	12	2	4	29	70	59	24
1	10	25	114	116	54	3	7	26	0	25	1	-2	6	27	176	182	12	-3	5	28	0	21	1	3	4	29	82	73	17
2	10	25	81	37	20	-3	8	26	87	75	17	-1	6	27	130	91	24	-2	5	28	123	125	14	-3	5	29	105	108	15
3	10	25	75	73	20	-2	8	26	77	25	22	0	6	27	387	341	13	-1	5	28	79	31	38	-2	5	29	173	154	17
-2	11	25	176	147	10	-1	8	26	46	39	46	1	6	27	99	90	24	0	5	28	375	314	13	-1	5	29	238	233	25
-1	11	25	334	282	10	0	8	26	72	52	32	2	6	27	175	182	15	1	5	28	0	31	1	0	5	29	46	23	46
0	11	25	92	85	30	1	8	26	0	40	1	3	6	27	53	36	39	2	5	28	142	125	17	1	5	29	215	234	14
1	11	25	289	282	19	2	8	26	40	25	39	-3	7	27	51	32	51	3	5	28	58	21	28	2	5	29	128	154	18
2	11	25	137	147	16	3	8	26	97	74	15	-2	7	27	68	21	25	-3	6	28	0	50	1	3	5	29	81	108	22
-2	12	25	129	139	14	-3	9	26	131	76	15	-1	7	27	183	175	10	-2	6	28	68	76	26	-2	6	29	0	24	1
-1	12	25	119	110	12	-2	9	26	61	80	30	0	7	27	265	251	12	-1	6	28	268	259	13	-1	6	29	0	44	1
0	12	25	132	113	20	-1	9	26	153	127	11	1	7	27	160	174	16	0	6	28	69	25	28	0	6	29	129	150	15
1	12	25	109	111	49																								

0	13	29	0	42	1	-1	12	30	46	54	45	-2	1	32	128	126	12	-1	4	33	112	140	14	-1	2	35	75	63	74
1	13	29	81	66	28	0	12	30	34	25	34	-1	1	32	92	124	21	0	4	33	78	75	24	0	2	35	0	71	1
-1	14	29	97	92	21	1	12	30	40	55	40	0	1	32	105	106	17	1	4	33	148	139	23	1	2	35	106	63	21
0	14	29	55	26	54	-1	13	30	72	88	34	1	1	32	98	124	21	2	4	33	27	74	26	-1	3	35	0	30	1
1	14	29	92	92	21	0	13	30	0	4	1	2	1	32	125	126	24	-2	5	33	82	76	19	0	3	35	96	80	20
0	15	29	0	30	1	1	13	30	69	87	33	-2	2	32	77	79	25	-1	5	33	120	120	17	1	3	35	0	30	1
0	0	30	95	91	28	-1	14	30	85	87	33	-1	2	32	63	50	39	0	5	33	80	57	23	-1	4	35	89	93	19
1	0	30	12	14	12	0	14	30	33	10	33	0	2	32	93	84	19	1	5	33	133	121	17	0	4	35	0	18	1
2	0	30	144	143	13	1	0	31	23	11	23	1	2	32	69	50	36	2	5	33	77	76	77	1	4	35	109	93	21
3	0	30	104	93	16	2	0	31	128	146	14	2	2	32	62	79	61	-2	6	33	20	19	19	-1	5	35	46	50	45
-3	1	30	70	70	27	-2	1	31	123	115	15	-2	3	32	181	163	11	-1	6	33	0	42	1	0	5	35	0	6	1
-2	1	30	71	120	70	-1	1	31	159	177	28	-1	3	32	66	70	36	0	6	33	65	61	32	1	5	35	27	49	26
-1	1	30	203	200	32	0	1	31	187	200	15	0	3	32	34	39	34	1	6	33	55	42	54	-1	6	35	107	115	16
0	1	30	54	39	54	1	1	31	173	177	21	1	3	32	77	70	30	2	6	33	0	20	1	0	6	35	70	54	27
1	1	30	182	200	38	2	1	31	108	116	15	2	3	32	121	163	30	-1	7	33	111	112	14	1	6	35	126	115	17
2	1	30	126	120	12	-2	2	31	72	95	24	-2	4	32	81	70	21	0	7	33	69	44	29	-1	7	35	0	56	1
3	1	30	53	70	53	-1	2	31	0	79	1	-1	4	32	225	263	11	1	7	33	137	111	18	0	7	35	77	84	24
-3	2	30	49	33	48	0	2	31	25	15	24	0	4	32	96	98	20	-1	8	33	62	73	33	1	7	35	48	56	48
-2	2	30	37	64	36	1	2	31	87	79	24	1	4	32	219	263	14	0	8	33	6	18	5	-1	8	35	80	26	38
-1	2	30	143	136	23	2	2	31	56	94	55	2	4	32	89	71	24	1	8	33	82	74	27	0	8	35	46	50	46
0	2	30	146	144	12	-2	3	31	165	165	18	-2	5	32	42	55	41	-1	9	33	69	70	27	0	9	35	0	7	1
1	2	30	106	136	20	-1	3	31	71	87	32	-1	5	32	96	113	19	0	9	33	63	27	63	0	0	36	97	106	35
2	2	30	63	64	23	0	3	31	103	113	20	0	5	32	138	131	14	1	9	33	0	70	1	1	0	36	55	1	55
3	2	30	52	33	51	1	3	31	88	86	31	1	5	32	104	113	45	-1	10	33	8	50	8	-1	1	36	23	76	22
-3	3	30	0	21	1	2	3	31	117	166	19	2	5	32	0	55	1	0	10	33	48	11	48	0	1	36	28	24	28
-2	3	30	54	63	49	-2	4	31	126	122	13	-2	6	32	61	30	32	1	10	33	46	50	45	1	1	36	0	76	1
-1	3	30	57	68	56	-1	4	31	69	68	36	-1	6	32	134	146	12	0	11	33	132	125	13	-1	2	36	0	26	1
0	3	30	300	302	11	0	4	31	103	87	18	0	6	32	96	116	17	0	0	34	254	258	25	0	2	36	49	87	48
1	3	30	43	68	43	1	4	31	100	69	20	1	6	32	145	146	15	1	0	34	57	41	56	1	2	36	41	25	40
2	3	30	0	63	1	2	4	31	110	122	19	2	6	32	0	30	1	2	0	34	0	45	1	-1	3	36	56	32	47
-2	4	30	134	121	16	-2	5	31	109	93	15	-2	7	32	49	23	49	-2	1	34	51	20	50	0	3	36	84	38	25
-1	4	30	99	113	27	-1	5	31	159	179	32	-1	7	32	99	115	18	-1	1	34	120	141	17	1	3	36	0	32	1
0	4	30	229	206	10	0	5	31	0	25	1	0	7	32	106	82	52	0	1	34	150	131	13	-1	4	36	78	49	29
1	4	30	98	113	19	1	5	31	167	178	14	1	7	32	115	115	17	1	1	34	131	141	17	0	4	36	23	16	23
2	4	30	85	121	29	2	5	31	0	93	1	2	7	32	0	23	1	2	1	34	33	20	32	1	4	36	0	49	1
-2	5	30	110	114	17	-2	6	31	140	145	13	-2	8	32	50	83	49	-2	2	34	84	76	26	-1	5	36	55	40	55
-1	5	30	78	81	22	-1	6	31	80	33	21	-1	8	32	81	91	21	-1	2	34	92	103	21	0	5	36	44	40	43
0	5	30	125	120	14	0	6	31	167	181	12	0	8	32	70	38	28	0	2	34	123	120	15	1	5	36	51	40	51
1	5	30	52	81	52	1	6	31	42	33	41	1	8	32	82	90	28	1	2	34	103	103	20	0	6	36	85	58	23
2	5	30	105	114	20	2	6	31	151	145	34	2	8	32	112	83	33	2	2	34	0	76	1	0	7	36	88	105	22
-2	6	30	135	142	13	-2	7	31	78	57	22	-1	9	32	36	39	35	-2	3	34	51	39	50	1	0	37	87	62	26
-1	6	30	109	121	15	-1	7	31	77	100	48	0	9	32	50	68	50	-1	3	34	95	103	17	-1	1	37	75	69	62
0	6	30	47	48	47	0	7	31	142	140	12	1	9	32	65	39	42	0	3	34	161	176	24	0	1	37	68	67	37
1	6	30	111	121	18	1	7	31	86	99	34	-1	10	32	60	63	29	1	3	34	101	103	21	1	1	37	82	69	35
2	6	30	121	142	33	2	7	31	0	57	1	0	10	32	25	31	24	2	3	34	0	39	1	-1	2	37	24	56	24
-2	7	30	63	54	33	-2	8	31	0	37	1	1	10	32	63	63	63	-2	4	34	42	45	42	0	2	37	13	29	12
-1	7	30	70	95	23	-1	8	31	88	88	20	-1	11	32	80	66	19	-1	4	34	107	135	15	0	3	37	121	103	17
0	7	30	70	45	30	0	8	31	74	23	27	0	11	32	0	42	1	0	4	34	75	89	37	0	4	37	167	153	13
1	7	30	77	95	28	1	8	31	100	88	70	1	11	32	19	66	19	1	4	34	130	135	34	0	5	37	48	60	47
2	7	30	64	54	44	2	8	31	0	37	1	-1	12	32	0	42	1	-1	5	34	115	116	14						
-2	8	30	130	134	14	-2	9	31	83	71	22	0	12	32	55	87	54	0	5	34	0	4	1						

10

20

【0031】

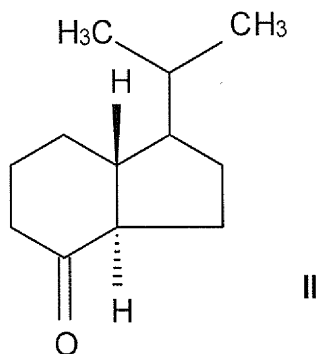
実施例2

051810の合成

30

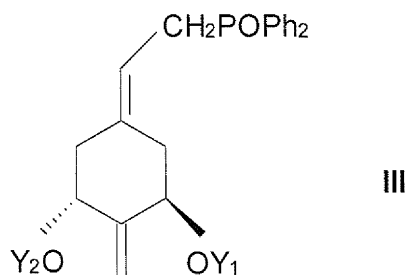
基本構造Iを有する051810の調製は、通常の一般的方法、すなわち、二環式ウィндаウス-グルンドマン型ケトンIIをアリルホスフィンオキシドIIIと縮合させて対応する2-メチレン-19-ノル-ビタミンD類縁体IVとし、続いて生成した化合物IVをC-1およびC-3で脱保護して化合物I、すなわち051810を得ることによって達成することができる。

【化2】

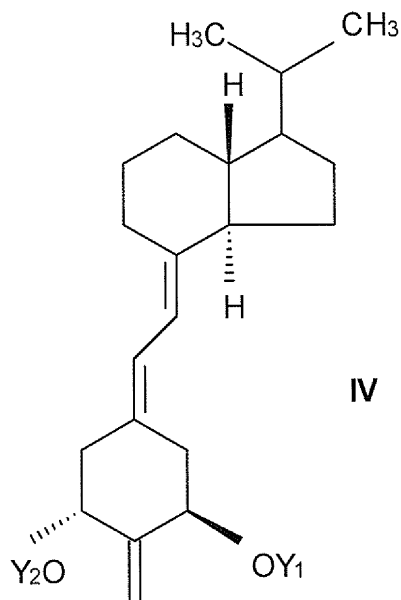


40

【化 3】



【化 4】



【0032】

ホスフィンオキシドIIIにおいて、Y₁およびY₂は好ましくは、シリル保護基などのヒドロキシ保護基である。t-ブチルジメチルシリル (TMDMS) 基は特に有用なヒドロキシ保護基の一例である。前述の工程は収束的合成概念の適用を意味し、これは多くのビタミンD化合物の調製に対して有効に適用されている (Lythgoe et al., J. Chem. Soc. Perkin Trans. I, 590 (1978); Lythgoe, Chem. Soc. Rev. 9, 449 (1983); Toh et al., J. Org. Chem. 48, 1414 (1983); Baggiolini et al., J. Org. Chem. 51, 3098 (1986); Sardin a et al., J. Org. Chem. 51, 1264 (1986); J. Org. Chem. 51, 1269 (1986); DeLuca et al., 米国特許第5,086,191号; DeLuca et al., 米国特許第5,536,713号; およびDeLuca et al., 米国特許第5,843,928号を参照されたく、これらはいずれも、すべてが本明細書に示されているかのごとく、その全体があらゆる目的のために参照により本明細書に組み入れられる。

【0033】

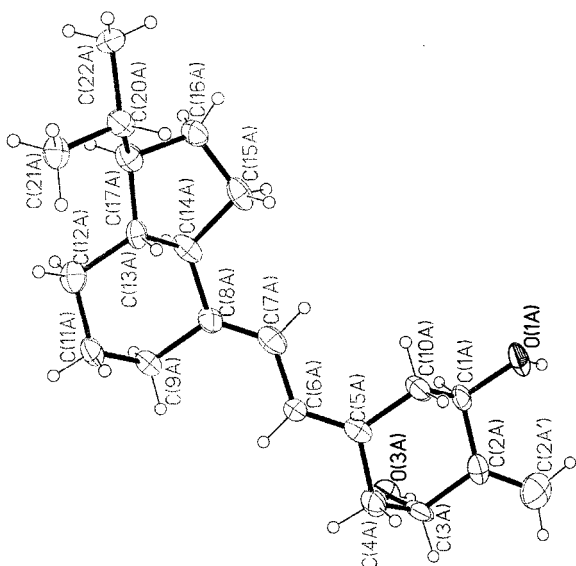
ホスフィンオキシドIIIは、多数の19-ノル-ビタミンD化合物を調製するために用いる好都合な試薬であり、Sicinski et al., J. Med. Chem., 41, 4662 (1998)、DeLuca et al., 米国特許第5,843,928号; Perlman et al., Tetrahedron Lett. 32, 7663 (1991); およびDeLuca et al., 米国特許第5,086,191号に記載の手順に従って調製され、これらの参考文献は、すべてが本明細書に示されているかのごとく、その全体が参照により本明細書に組み入れられる。

【0034】

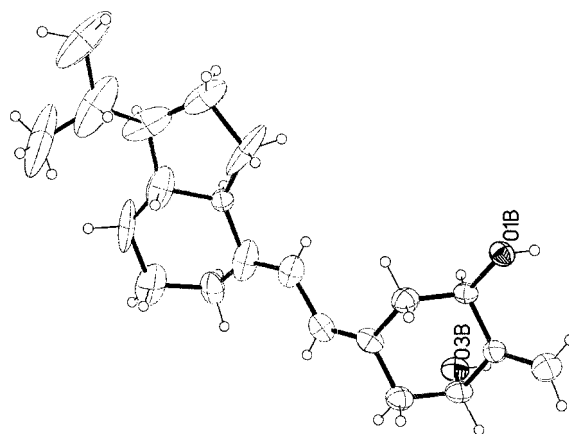
化合物Iの合成の全工程は、「2-Alkylidene-19-Nor-Vitamin D Compounds」なる標題の米国特許第5,843,928号および「2-Methylene-18,19-Dinor-1 α -Hydroxy-Homopregnacalci ferol and Its Uses」なる標題の米国特許第7,238,681号により完全に例示および記載さ

れており、その明細書は特に参照により本明細書に組み入れられる。

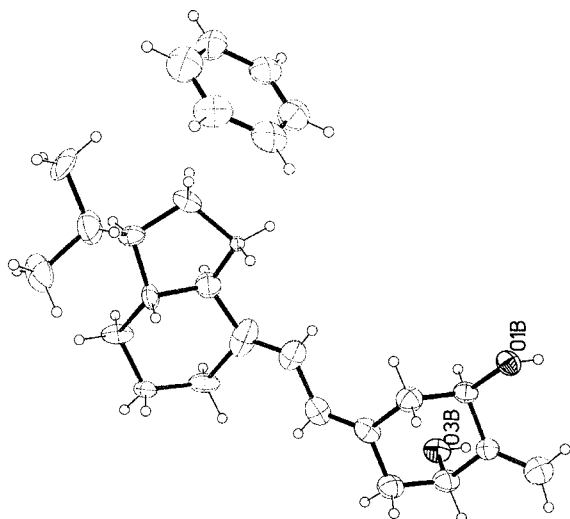
【図 1】



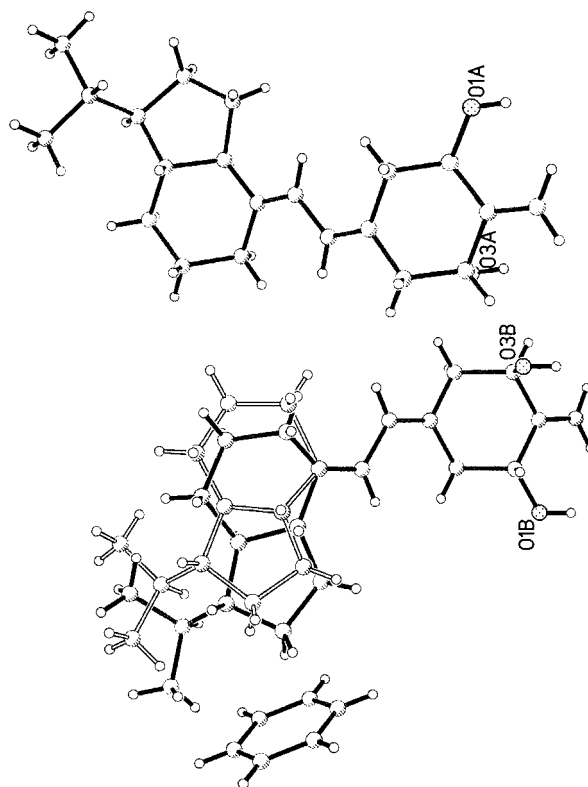
【図 2 a】



【図 2 b】



【図 3】



フロントページの続き

- (74)代理人 100142929
弁理士 井上 隆一
- (74)代理人 100148699
弁理士 佐藤 利光
- (74)代理人 100128048
弁理士 新見 浩一
- (74)代理人 100129506
弁理士 小林 智彦
- (74)代理人 100130845
弁理士 渡邊 伸一
- (74)代理人 100114340
弁理士 大関 雅人
- (74)代理人 100114889
弁理士 五十嵐 義弘
- (74)代理人 100121072
弁理士 川本 和弥
- (72)発明者 デルーカ ヘクター エフ.
アメリカ合衆国 ウィスコンシン州 ディアフィールド ハイウェイ ビービー 1809
- (72)発明者 バリーッキ ラファル
アメリカ合衆国 ウィスコンシン州 マディソン ハーパー ハウス ドライブ 809 #4
- (72)発明者 トダン ジェームス ビー.
アメリカ合衆国 ウィスコンシン州 マディソン アスペン ロード 2109
- (72)発明者 ホールデン ハゼル エム.
アメリカ合衆国 ウィスコンシン州 フィッチバーグ ティンバーランド サークル 5826
- Fターム(参考) 4H006 AA01 AA02 AD15 BB11 BB17 BC51 UA13 UA51

【外国語明細書】
2014122178000001.pdf