研究課題別中間評価結果

1. 研究課題名：酸・塩基複合型超分子動的錯体を鍵とする高機能触媒の創製

2. 研究代表者：石原　一彰（名古屋大学大学院工学研究科　教授）

3. 研究概要

生体酵素は活性中心近傍に動的かつ立体特異的なポケットを形成し、高度な触媒機能を発現している。しかし、環境に優しい温和な反応条件下、酵素に匹敵する高度な機能を備えた、真に実用的な人工触媒を小分子サイズで開発することは困難である。本研究では酸・塩基複合化学を基盤に動的機能を備えた自己会合型超分子触媒を創製し、その効率的な製造法の確立とともに、生体酵素を凌駕する高次立体化学制御有機反応プロセスの実現を目指している。

4. 中間評価結果

4－1. 研究成果の現状

超原子価ヨウ素－キラル第四級アンモニウム塩触媒と共酸化剤である過酸化水素を組み合わせ、ケトフェノールの酸化的環状エーテル化反応によって、エナンチオ選択的にジヒドロベンゾフラン誘導体を高選択率、高収率で合成できる方法を開発した。本反応は、金属を用いず、我が国で多く産出されるヨウ素を用いた触媒系で、室温で進み、副生成物が環境負荷の小さい水である点に特長がある。

酵素はエナンチオ選択性のみならずジアステレオ選択性も制御する。単一分子触媒では困難な高次選択性をもたせるために、深い触媒ポケットをもったキラル超分子触媒の開発を進めた。反応物質の化学構造依存性が高い反応例として公知の Diels-Alder 反応を取り上げ、ジアステレオ選択性を逆転させる触媒の開発に取り組み、その結果、ナフタレン骨格をもつキラルな配位子、ボロン酸、トリス（ペンタフルオロ）ボランからなるキラル超分子触媒によって、通常では得られない逆のエンド・エキソ異性体を高選択率で得ることに成功している。

研究代表者の強力なリーダーシップの下で、共同研究グループの計算科学成果を有効利用し、包括的に研究が進められている。

研究成果は、Science を始め J. Am. Chem. Soc.、Angew. Chem. Int. Ed. などの有力誌に掲載され、被引用回数も多い。

4－2. 今後の研究に向けて

研究代表者が創出した深い触媒ポケットは、構成分子の選択により柔軟な構造変化が期待できる。この知見をもとに、さらにターゲットを広げ、様々の分子の高次立体化学制御、高収率合成に挑戦していただきたい。また、これまでの常識を打ち破るような、水環境下での反応制御に一段の飛躍を期待したい。

4－3. 総合的評価

超原子ヨウ素触媒の斬新な成果など新たな展開も考慮すると非常に高く評価できる。

反応の精密制御のため、触媒構造を高度化するとともに、多段階反応、カスケード反応など新規な思いもかけない反応の開発にも挑戦していただきたい。