

## 研究課題別 1 年延長評価結果

1. 研究課題名：有機合成用鉄触媒の高機能化

2. 研究代表者名及び主たる研究参加者名（研究機関名・職名は研究参加期間終了時点）：

研究代表者

永島 英夫（九州大学先導物質化学研究所 教授）

3. 事後評価結果

○評点：

A+ 期待を超える十分な成果が得られている

○総合評価コメント：

本研究課題では有機合成に用いられてきた白金、パラジウム、ロジウム、ルテニウムなどの貴金属触媒の鉄系触媒への代替（元素代替）、固定化触媒を用いる触媒回収・再利用（元素循環）、触媒効率の向上（元素減量）を目的として、オールジャパンともいえる多くの優れた研究者を 2 グループに束ね、配位子場制御に基づく鉄触媒の開発（鉄触媒開発グループ）と、固定化・フロー系などの媒体反応駆動原理の確立に基づく革新的触媒プロセスの開発（プロセス開発グループ）が進められてきた

それを踏まえて、本年度延長 1 年間の研究期間においては、①H28 年度までの研究総まとめとしての貴金属触媒の鉄触媒化と理論・実験の融合による鉄触媒の新しい概念と研究手法の開発、②鉄触媒の世界的拠点形成、および③グループ連携によるイノベーション創出、を目指したものである。

結果として、①既知のルテニウム触媒を凌駕する C-H 結合活性化反応の鉄触媒化、オレフィンの鉄触媒水素化の実現と理論による機構解明、含窒素発光パイ電子系の鉄触媒合成法の開発、ポリスチレン固定化ホスフィン・鉄触媒系の開発、常磁性鉄種のフロー XAFS 解析法・装置開発などを達成した。② 前年度から活動していた国際連携の取り組みも、最終的に 2018 年 1 月に開催した九州大学での第 2 回国際ベースメタルシンポジウムによって、本鉄触媒研究グループが世界拠点として対外的に大きく発信することに繋がった。③鉄およびコバルト触媒ヒドロシリル化の触媒の簡便化を図り、より実用化に近づけたこと、および鉄触媒クロスカップリング反応の医薬品合成を企業との連携で取り組む体制が構築された。また、INPIT 知財プロデューサーとの共同により、特許群を拡充させた。

この様に、1 年間延長の当初の目標は期待以上に達成されたと、高く評価できる。今後も本 CREST で構築された研究ネットワークを基盤とし、継続的な国際連携活動含め、鉄触媒研究の次なる発展を期待する。

特記事項（2024年3月追記）：

本研究課題における一部の成果発表等に関し、令和5年（2023年）9月20日、国立大学法人北海道大学によって不正行為（捏造及び改ざん）が認定された（国立大学法人北海道大学 公表資料；<https://www.hokudai.ac.jp/news/2023/09/post-1309.html>）。具体的には、主たる共同研究者の北海道大学大学院理学研究院 澤村正也教授の研究グループにおいて、 $sp^3$ 炭素-水素結合の直接ホウ素化反応を実現する触媒開発の一環で得られた1報の論文、ならびに当該成果の発展形として本研究課題終了後にまとめた1報の論文（いずれも筆頭著者はRonald L. Reyes 元特任助教、責任著者は澤村正也教授）の使用データに不正行為がなされたことが判明し、著者らに取り下げを申し入れ、論文が撤回された。

本研究グループでは、固相担持ホスフィン配位子 Silica-SMAP およびポリスチレン3点担持ホスフィン PS-TPP の開発と、これを用いる Ir および Rh 触媒 C( $sp^3$ )-H ホウ素化反応の開発が進められた。この成果として、キラルホスホロアミダイト配位子を用いると均一系でも C( $sp^3$ )-H ホウ素化反応が進行し、中程度のエナンチオ選択性(40~60% ee)が発現することが上記不正行為に関与していない研究者により見出された。その後 Ronald Reyes 元特任助教に引き継がれ、データの取りまとめを行い、2017年9月に当該論文（本研究課題の1年延長研究終了報告書の「§4. 成果発表等」「(1) 原著論文発表」のうち No. 250（成果から除外済））の発表に至ったが、撤回されている。

これらの研究不正行為があったことは極めて遺憾であり、再発防止の徹底を強く求める。

本研究課題に対する当初の事後評価は、機構の定める規則に基づき、研究課題終了年度及び1年延長年度に実施し、それを公表した。今回の一連の経緯を踏まえつつ、事後評価の観点である研究課題実施時点での研究目的の達成状況等を改めて確認したところ、不正行為の対象となった成果（直接的な評価の対象としては、2017年9月に発表された論文）は、本研究グループの研究の一部に関連するものの、本研究グループの研究目的とは異なる派生的成果であり、本研究課題全体の成果に大きく影響を与えるものではないものと考えられる。以上のことから、本研究課題に対する事後評価結果における評点の変更は行わないこととする。