

学位論文題名 金属カルベン反応に立脚した有用分子骨格の構築と応用
研究
氏 名 橋本 佳典

【論文要約】

本論文は、以下に示す2つの実験結果について纏めたものである。

第1部にて、所属研究室で開発されたアミド挿入反応を適用することで、多くの天然物や医薬品に頻出するアザビシクロ [3.3.1] ノナン骨格の構築に成功した。また、バイオ触媒を駆使することで、有機分子触媒では困難であった不斉点の導入に成功した。この際、用いる有機溶媒によって酵素の触媒機能を制御できることを見出している。更に、誘導体化を行い、20種類以上のモノテルペンインドールアルカロイドの形式不斉合成を達成し、多様性指向型合成法の開発に成功した。本手法は、合成経路終盤にインドール基を導入でき、非天然型のモノテルペンインドールアルカロイドも網羅的に合成可能である。即ち、様々な縮環インドール類を含む化合物ライブラリーの構築が可能であり、将来的には創薬科学的に重要な手法となり得る。

第2部にて、ねじれたウレア基とイリドを併せ持つ「ねじれ型ウレアイリド」の反応性を開拓し、世界初となる環状ウレアの環拡大反応に成功した。また、ねじれ型ウレアイリドの不斉化に向けて、アミダート配位子を有する新規キラルロジウム触媒を合成し、その適用範囲の確認を行った。最後に、密度汎関数法に基づく理論計算を用いて、進行し得る分子内反応の活性化エネルギーを評価することで、ねじれ型ウレアイリドの安定性に関する考察を行った。