

## 【特別推進研究】

### 理工系（化学）



#### 研究課題名 炭素-水素活性化の化学の深化による有機合成技術の革新

大阪大学・大学院工学研究科・教授

みうら まさひろ  
三浦 雅博

研究課題番号： 17H06092 研究者番号：20183626

研究分野： 化学、複合化学、合成化学

キーワード： 炭素-水素結合活性化、クロスカップリング、有機機能性材料

#### 【研究の背景・目的】

近年、炭素-水素結合の触媒的活性化の化学は、新しい効率的な次世代型分子変換法の開発基盤として注目を集め、国内外を問わず最も活発に研究が行われている分野の一つである。本課題では、研究代表者らがこれまでに蓄積してきた当該分野に関する知見を基に、炭素-水素結合活性化の化学を確固たる学問領域として確立し、真に有用な有機合成化学の技術として体系化するための礎となる研究を推進する。具体的には、(1) 概念的に新規な炭素-水素結合活性化触媒の創出と高難度分子変換手法の開発、

(2) 実践的かつ標的指向型の直接クロスカップリング反応の開発による高性能機能性分子の創製、

(3) 炭素-水素結合活性化・切断の機構解明、の三点を研究の中心に据える。これにより「直接クロスカップリングの真の価値」の創造に資することを目標とする。

#### 【研究の方法】

上記の目標の達成に向けて、以下の課題(1)～(3)を実施する。

(1) 新規遷移金属錯体触媒と酸化剤の協働機能による芳香族化合物の酸化カップリング: 研究代表者らが炭素-水素結合活性化のために独自開発したロジウム触媒系からの発展的新概念による新規錯体触媒系の設計と高難分子変換反応法の開発を目指す。

電子的ならびに構造的に柔軟な配位子を触媒中心に組み込み、触媒と外部酸化剤が協働的に機能する特異な反応場を構築することで、従来必須とされていた配向性官能基を持たない、ベンゼンをはじめとする単純な芳香族化合物の直接的かつ高度な分子変換手法を開発する。

(2) 直接クロスカップリングによる高度縮環(ヘテロ)芳香族化合物の合成と機能創出: 二つの異なる炭素-水素結合を選択的に活性化し、複数の炭素-炭素結合を一挙に形成する多重脱水素環化反応や、アルキンとの酸化的多重縮環反応を促進する触媒反応を開発する。これを応用することで平面ならびに非平面型の高度縮環炭素環およびヘテロ環化合物を合成する。これらはホール及び電子輸送材料や強発光材料、またキラリティーに基づく円偏光発光材料の創製へと展開する。

(3) 炭素-水素結合活性化のメカニズム解明: これまでに国内外での活発な研究によって、炭素-水素結合活性化のための多種多様な触媒系が開発されてきた。しかし、その反応機構の多くは詳細が明らかになっておらず、このことが新たな反応や触媒の理論的設計を阻んでいる。本研究では、第二周期とともに第一周期の遷移金属種の分子機構の解明も視野に入れ、錯体化学を中心としたアプローチを展開する。また、計算化学的アプローチも組み込み、炭素-水素結合活性化の学理の確立に寄与する。

#### 【期待される成果と意義】

上記のように、本研究では「直接クロスカップリングの真の価値」の創造に向けて、新規高性触媒の創出とそれに基づく高難度分子変換法の開発、新規機能性材料創製法の開発、炭素-水素結合活性化のメカニズム解明を目指すものである。これにより、当該先端学問領域を深化させるとともに、環境調和性の高い新しい分子変換技術と機能性分子の創製法を生み出し、物質供給面から現代社会の持続可能な発展に対して貢献することが期待される。

#### 【当該研究課題と関連の深い論文・著書】

- Development of Direct Aromatic Coupling Reactions by Transition Metal Catalysis, M. Miura, T. Satoh, K. Hirano, *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **2014**, *87*, 751-764.
- Recent Advances in Copper-Mediated Direct Biaryl Coupling, K. Hirano, M. Miura, *Chem. Lett.* **2015**, *44*, 868-873.

#### 【研究期間と研究経費】

平成 29 年度-33 年度 388,800 千円

#### 【ホームページ等】

<http://www.chem.eng.osaka-u.ac.jp/~miura-lab/miura@chem.eng.osaka-u.ac.jp>