

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 6 月 30 日現在

機関番号：37112

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2018～2022

課題番号：18H01969

研究課題名(和文) 高速かつ高精度な配座解析を軸とした理論計算が先導する不斉有機触媒の開発

研究課題名(英文) Development of Asymmetric Organic Catalysts Using Accurate and Efficient Conformational Analysis

研究代表者

蒲池 高志 (Kamachi, Takashi)

福岡工業大学・工学部・教授

研究者番号：40403951

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,200,000円

研究成果の概要(和文)：有機分子触媒は有毒な重金属の残留の心配がなく、レアメタルの高騰や枯渇の問題に対応できる理想的な触媒であり、その開発が社会的に求められている。本研究では独自に種々の配座解析法を開発し、有機分子触媒のエナント選択性が発現する原因を明らかにしてきた。独自に開発したConFinderプログラムを利用して、高速かつ高精度な配座解析を実施した。これにより、高い選択性が発現する原因となる特別な配座を解明することが可能で、反応機構の解析や触媒設計のヒントが得られる。分担者の有機分子触媒を開発している実験グループと共同で、エステルの不斉加水分解反応に関する研究を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

従来利用されている金属を含む触媒は、貴金属が必要であったり、重金属を含むために環境汚染の問題がある。金属を含まない有機分子触媒に置き換えることができれば、これらの問題を解決することができるため、医薬品の合成やコスト削減が期待できる。最近、有機分子触媒の開発者がノーベル賞を受賞するなど、注目が高まっている。しかしながら、有機分子触媒と基質はの水素結合などの弱い相互作用で結びついており、その開発やメカニズム解明は実験的な手法だけでは難しい。本研究で用いている高精度な配座解析が有機分子触媒による不斉合成反応に有効であることを示すことができた。

研究成果の概要(英文)：Organocatalysts are ideal catalysts that are free from toxic heavy metal residues and can address the issues of rising rare metal prices and depletion. In this study, we have developed a variety of conformational analysis methods to elucidate the causes of enantioselectivity of organocatalysts. We used our own ConFinder program to perform fast and accurate conformational analysis. This program allows us to elucidate the specific conformations responsible for the high selectivity, providing hints for the analysis of reaction mechanisms and the design of catalysts. In collaboration with an experimental group developing organocatalysts, we conducted research on asymmetric hydrolysis reactions of esters.

研究分野：理論化学

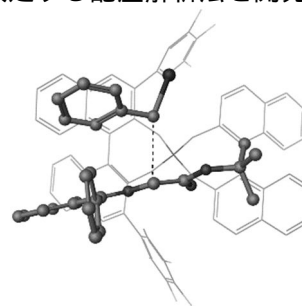
キーワード：有機分子触媒 配座解析 密度汎関数法

1. 研究開始当初の背景

有機分子触媒は金属元素を含まない炭素、酸素、窒素などの典型元素から構成された触媒である。有毒な重金属の残留の心配がなく、レアメタルの高騰、枯渇などの社会的問題の解決を目指す元素戦略の観点からも理想的な触媒である。有機金属触媒と違い、有機分子触媒反応では水素結合やファンデルワールス力といった弱い相互作用で立体選択性を制御している。このため、高い選択性の実現には、これらの相互作用をうまく組み合わせる遷移状態の構造を設計する必要があり、極めて難しい。時間がかかり、高コスト、さらに環境負荷の高い化学的合成とテストの繰り返しによる触媒開発は限界に近づいている。

計算機の高速度化や精度の高い密度汎関数法(DFT)の発展により、弱い相互作用が関与する系についても精度の高い理論計算が可能となった。このため、計算化学を用いた合理的触媒設計に期待が高まっている。しかしながら、弱い相互作用からなる遷移状態には膨大な組み合わせの配座があり、この中から最も安定で重要な配座を決定するには多数のコンピューターを使ってもかなりの計算時間が必要である。このため、計算化学的な解析には、実験から多くのヒントを必要とし、遷移状態の構造がある程度予測できている系にのみ信頼できる計算が可能であった。

研究代表者は高精度かつ現実的な時間内で最安定な配座を決定する配座解析法を開発してきた。独自のDFT法に基づく配座解析法により、代表的な不斉有機触媒反応である丸岡触媒による不斉アルキル化反応を解析したところ、長年不明であった遷移状態の構造を世界に先がけて解明できた。さらに、DFT法に比べて遥かに高速でありながら、比較的精度の高い半経験的分子軌道法を用いた配座解析プログラム(ConFinder)を独自に開発した(Kamachi et al. J. Chem. Inf. Model., 56, 347, (2016))。このプログラムにより、通常のPCを用いても数千の配座をわずか数日で生成することができる。また、このなかでエネルギー的に安定な数十の配座の中に、最も安定な構造が含まれていることを精度の高いDFT計算により確認した。このように我々が開発した計算化学的手法により、有機分子触媒の選択性向上に重要になる遷移状態の構造を短時間で予測する方法が確立された。



申請者が解明した最安定な遷移状態の構造。複雑な巨大分子でも計算可能になった。

2. 研究の目的

このような背景のもと、本研究では研究分担者の山本英治助教との連携により、計算化学先導型の有機分子触媒の開発を実現する。(a) 分担者が申請者に開発段階だが新たなシードとなる触媒の情報を提供し、申請者が高速かつ高精度な配座解析により、改善方法を提案する。(b) 分担者が実際の実験により、結果を確認する。改善しない、実験が難しいなど、当初の想定のごさや問題点を洗い出す。この(a)と(b)のサイクルを繰り返すことで、触媒開発にかかる時間の短縮を目指す。さらに、分担者に実験化学者の観点から要望を聞き、ConFinderを改善、より使いやすいプログラムにする。

3. 研究の方法

申請者が開発した高速かつ高精度な配座解析法を用いれば、化学的に重要な安定な配座を短期間に決定できる。そこで、多数の修飾基をある程度ランダムに基質や触媒に導入するバーチャルスクリーニングを実施する。これまでに有機分子触媒に関する文献を調査し、500を超える修飾基を含むライブラリーを既に完成している。

これまでの研究から、選択性に重要となる相互作用は多数の配座間で共通のパターンとして現れることが分かっている。そこで、仮想触媒系について得られた多数の配座を機械学習によるパターン認識により分類し、選択性の発現に有用な相互作用のパターンを見つけ出す。精度の高いDFT計算を用いて相互作用エネルギーが大きな系を決定し、有望な触媒の第一候補を得る。また、この段階で分担者が確認し、合成が困難な系については除外することで実現可能性を高める。残った有望な候補については、望ましくないエナンチオマーを与える遷移状態についても解析する。相互作用エネルギーが大きく、かつエナンチオマー間のエネルギー差が大きな系は不斉触媒として機能することが期待できるため、これを分担者が実際にこの系を合成し、検証する。これは従来の触媒開発とは全く異なるアプローチであり、従来の延長線上にない成果が期待できる。

4. 研究成果

コロナ感染拡大の影響があったが、研究成果3報をアメリカ化学会の学術雑誌に掲載された。以下に概要を示す。

(1) “Dynamic Kinetic Resolution of N-Protected Amino Acid Esters via Phase-Transfer Catalytic Base Hydrolysis”

E. Yamamoto, K. Wakafuji, Y. Furutachi, K. Kobayashi, T. Kamachi, M. Tokunaga, *ACS Catalysis* **8**, 5708-5713, (2018).

1. 緒言

酵素を用いたエステル不斉加水分解は、光学活性カルボン酸を与える優れた手法として広く利用されている重要な反応である。しかし、分子触媒を用いた効率のよい触媒系はこれまで達成されていなかった。研究分担者は、これまでにキラル四級アンモニウム塩を相間移動触媒として用いた、エステル塩基加水分解を伴う不斉プロトン化反応の開発に取り組んできた。本研究では、この手法を応用し、キラルエステル的一种である N-保護アミノ酸エステルの不斉塩基加水分解を検討した。

2. 実験方法

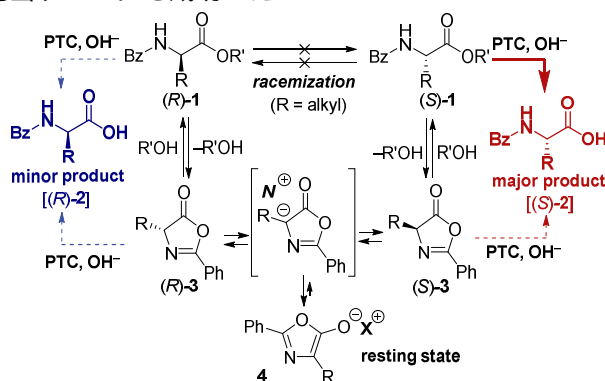
CHCl₃ 溶媒中、塩基として 1 M NaOH 水溶液を用い、シンコナルカロイド由来の四級アンモニウム塩 (10 mol %) 存在下において N 保護アミノ酸エステルを加え、0 °C で 24 時間攪拌した。反応終了後、酢酸エチルを加えて有機層を抽出し取り除いた。その後、6 M HCl 水溶液および追加の酢酸エチルを加えて再度抽出操作を行い、目的の光学活性アミノ酸が含まれる有機層を回収した。有機層の濃縮乾燥後に目的物の収率を求めた後、TMS ジアゾメタンによって対応するメチルエステルへと誘導したのち、HPLC 分析によって光学純度を決定した。

3. 結果と考察

キニーネ由来の 2-シアノベンジル基を有する相間移動触媒 (PTC 1) を用いることで、位に高い脂肪族置換基または芳香族基を持つ N-Bz アミノ酸の HFIP エステルの不斉塩基加水分解が高収率かつ高立体選択的に進行することを見出した (最大 99% 収率, 96:4 er)。

次に、本反応のラセミ化機構および立体選択性の起源を明らかにするため、実験的、計算化学的手法を用いた反応機構解析を行った。まず、反応系中で生成する副生成物を分析したところ、対応するアズラクトンが生成していることを確認した (Scheme 1)。また、このアズラクトンは、反応系中でヒドロキシオキサゾールへと変換されることで、収率が低下する原因になることも明らかになった。さらに、系中で生じるアズラクトンの不斉加水分解が選択的に進行している可能性も考えられるが、これを基質とした場合、選択性が大きく低下することを確認している。また、HFIP 存在下、アズラクトンを基質として反応を行うとその開環反応が進行し、対応する HFIP エステルが生成することも確認している。ここでは述べないが、さらに詳細な実験結果を踏まえ、本反応は、アズラクトンの生成とラセミ化、およびアルコールによる開環を伴う動的速度論分割型の不斉加水分解が進行していると推測している。

また、高速配座探索プログラム ConFinder を用いて発生させた遷移状態の有力候補構造から TS 計算 (M06-2X/TZVP) を行った。その結果、実験結果と良い一致を示すエステル不斉加水分解の遷移状態構造を見出すことにも成功した。



Scheme 1. Proposed reaction mechanism

(2) “Dynamic Kinetic Resolution of Azlactones via Phase-Transfer Catalytic Alcoholysis”

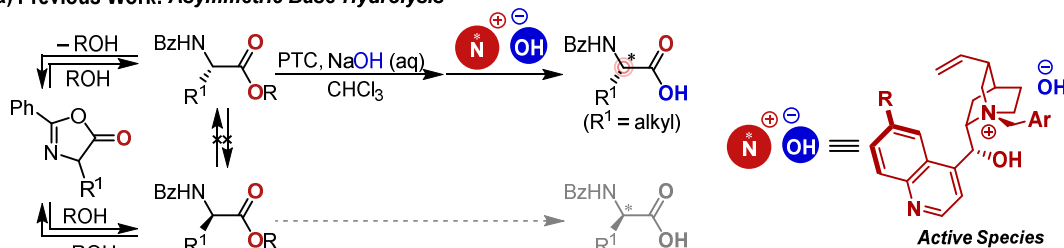
K. Wakafuji, S. Iwasa, K. N. Ouchida, H. Cho, H. Dohi, E. Yamamoto, T. Kamachi, M. Tokunaga, *ACS Catalysis* **11**, 14067-14075, (2021).

光学活性アミノ酸誘導体はキラル化合物合成のビルディングブロックとして利用可能なほか、それ自身が生物活性を持つものも知られている重要な化合物群であり、その触媒的不斉合成法について数多くの研究が行われている。その中でも、アズラクトンの加アルコール分解による動的速度論分割 (Dynamic Kinetic Resolution, DKR) は光学活性なアミノ酸エステルを得る有力な手法の一つである。しかし、これまで報告された触媒系では利用可能なアルコールが制限されている点や、 α 位にかさ高い置換基を有するア

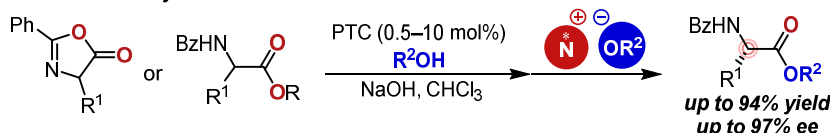
ズラクトン基質で高い立体選択性を達成できていないといった課題が残されていた。

これまで、研究分担者はキラル四級アンモニウム塩を相間移動触媒 (Phase-Transfer Catalyst, PTC) としたアミノ酸エステル類の動的速度論的不斉塩基加水分解を報告している。この塩基加水分解反応では *N*-ベンゾイル保護アミノ酸エステルの分子内環化によるアズラクトンの生成とラセミ化、およびアルコールによる開環が系中で起こっていることが明らかとなっている (Scheme 2. a)。我々はこの知見に基づき、系中に別のアルコールを添加することによって、アミノ酸エステルやアズラクトンの加水分解による光学活性アミノ酸エステルの新たな合成法を開発できると考え、研究に着手した。その結果、アズラクトンおよび *N*-保護アミノ酸エステルの相間移動触媒による不斉加水分解反応を開発することに成功し、対応する光学活性アミノ酸エステルを最大 94% 収率、97% ee の立体選択性で得ることに成功した (Scheme 2. b)。

(a) Previous Work: Asymmetric Base-Hydrolysis



(b) This Work: Alcoholic DKR of Azlactones and Amino Acid Ester



Scheme 2. PTC Catalyzed DKR-Type Base-Hydrolysis and Alcoholysis

アズラクトン、およびアルコールの詳細な適用範囲を調べた結果、 α 位に *t*-ブチル基などのかさ高い置換基を有するアズラクトンにおいて高い立体選択性が発現することが明らかとなった。アルコールについてはベンジルアルコールやその誘導体を中心に検討を行ったところ、多様なアルコールを基質として用いることが可能であり、中でも 2, 4, 6-トリメチルベンジルアルコールを用いた場合に非常に高い立体選択性で目的物が得られている。さらに、触媒量を 0.5 mol% まで低減させた場合でも立体選択性をほとんど落とさずに目的物を得ることに成功している (Table 1)。

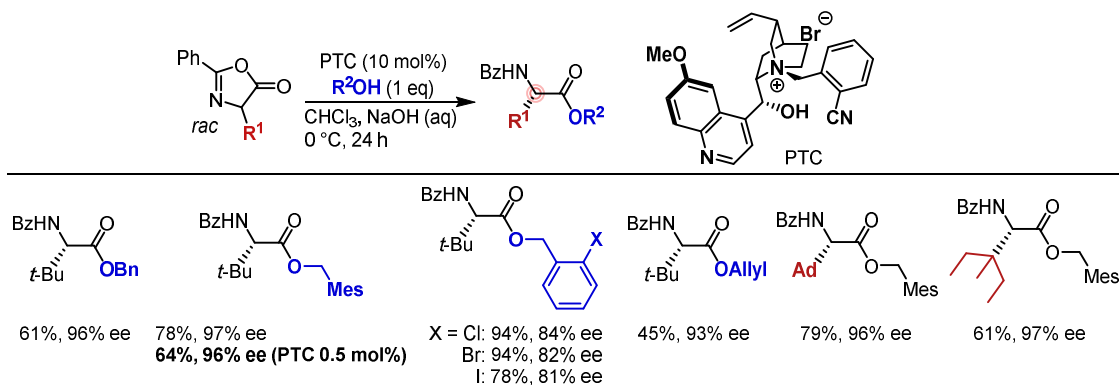


Table 1. Scope of Alcohols and Azlactones

本反応の立体選択性発現機構を調査するため、計算化学による遷移状態 (Transition State, TS) 構造の探索を行った。TS 計算に用いる適切な初期構造の候補を生成するため、分子力学計算と半経験的分子軌道法を組み合わせた配座探索プログラムである ConFinder プログラムを用いた疑似遷移状態配座探索を行った。触媒活性種とアズラクトンのみの系では実験結果と矛盾する配座が得られたのみであったが、水を一分子加えると実験結果とよく一致するエネルギー差を持つ TS 構造候補を得ることができた。この候補構造に対して DFT 計算による TS 計算を行ったところ、有力な TS 構造を得ることができた (Figure 1)。ConFinder を用いた配座探索により、従来の配座探索手法では困難であった、大きさが非常に小さく多様な水素結合を形成可能な水分子の適切な配置を決定することに成功した。アズラクトンと触媒活性種、および水分子との間に水素結合や π スタッキングといった非共有性相互作用が見られ、特にこの水分子を介した水素結合の様式の違いが立体選択性の発現に寄与している可能性が示唆された。

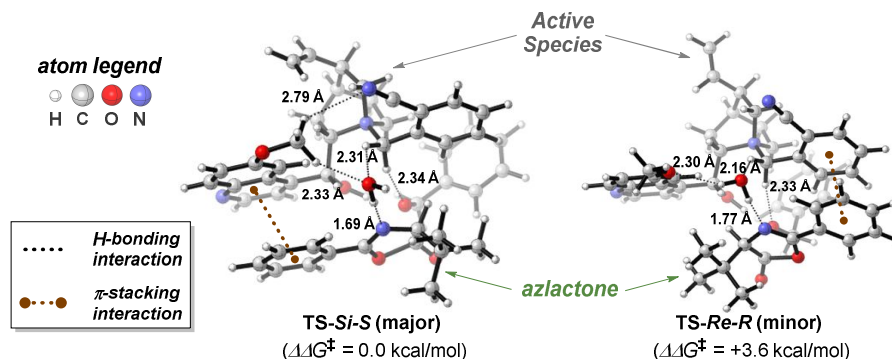
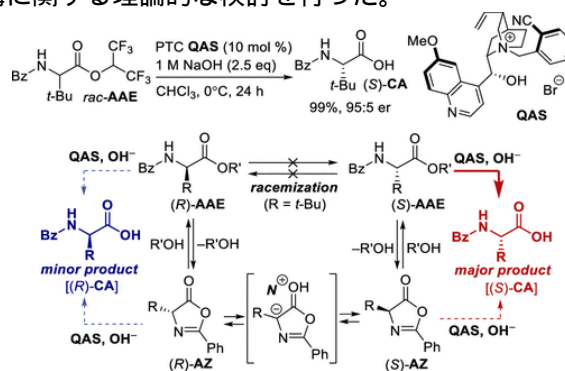


Figure 1. Calculated TS Structures Leading to Each Enantiomer at the B97D/TZVP Level of Calculation (at 273 K, in chloroform)

(3) “Theoretical Mechanistic Investigation of the Dynamic Kinetic Resolution of N-Protected Amino Acid Esters using Phase-Transfer Catalysts”

E. Yamamoto, K. Kobayashi, K. Wakafuji, T. Kamachi, M. Tokunaga, *Journal of Organic Chemistry*, **88**, 7748-7754, (2023).

我々は最近、環境に優しいアルカリ金属水酸化物塩基を用いた相間移動触媒的塩基加水分解による N-保護アミノ酸エステルの動的・速度論的分解触媒 (DKR) を開発した。この液体-液体 (NaOH(aq)/CHCl₃) 二相触媒系では、相間移動触媒 QAS の存在下、0 で N-ベンゾイル tert-ロイシンヘキサフルオロイソプロピル (HFIP) エステル (AAE) の不斉加水分解が進行し、対応する N-ベンゾイルアミノ酸 (S)-CA が収率 99%、95:5 er で得られる (Scheme 3)。これまでに、予備的な実験と理論的な機構解明が行われたが、いくつかの疑問はまだ解決されていない。我々はこれまで、いくつかの対照実験とエステル加水分解経路の遷移状態 (TS) 構造の理論的検討から、不斉エステル加水分解の立体決定段階は、ヘキサフルオロイソプロピルエステル (HFIP エステル) のカルボニル炭素への水酸化物の求核攻撃であり、基質のラセミ化は、ヘキサフルオロイソプロパノール (HFIP) とのアズラクトン形成とアズラクトン開環を介して起こると提案してきた。本研究では、これらの反応機構に関する理論的な検討を行った。



Scheme 3. Proposed reaction mechanism of the dynamic kinetic resolution of the esters

この不斉加水分解反応のエナンチオ選択性の起源を解明するためには、分子間遷移状態 (TS) 構造を特定する必要があるが、有機触媒反応では水素結合などの弱い相互作用で基質と結びついているので、遷移状態の構造が複雑であり、多くの TS 候補が生成されるため、その同定が困難である。そこで、我々が独自に開発した ConFinder プログラムを用いた「疑似-TS 構造探索」が行われた。この手法では、反応の中間体と基質の複合体を、反応経路を導くと考えられる遷移状態に近づくような構造を重点的に探索することが可能である。この配座解析の結果、S-または R-生成物に至る最も安定な TS 構造が特定された。また、この TS 構造において、有機触媒の化合物と基質との間で π-スタッキングや水素結合などの非共有結合相互作用が重要な役割を果たしていることが明らかになった。これらの水素結合の存在や距離の違いが TS 構造のエネルギー差に影響を与え、不斉選択性の調節に寄与していることが示された。また、一部の反応条件下では水素結合が形成されない TS 構造も観察され、これが選択性の差異に影響を与えていることも明らかになった。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計15件（うち査読付論文 15件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Yamamoto Eiji, Kobayashi Kaoru, Wakafuji Kodai, Kamachi Takashi, Tokunaga Makoto	4. 巻 88
2. 論文標題 Theoretical Mechanistic Investigation of the Dynamic Kinetic Resolution of N-Protected Amino Acid Esters using Phase-Transfer Catalysts	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 The Journal of Organic Chemistry	6. 最初と最後の頁 7748 ~ 7754
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.joc.2c02352	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Hamamoto Nobutsugu, Tatsumi Toshinobu, Takao Motoshi, Toyao Takashi, Hinuma Yoyo, Shimizu Ken-ichi, Kamachi Takashi	4. 巻 125
2. 論文標題 Effect of Oxygen Vacancies on Adsorption of Small Molecules on Anatase and Rutile TiO ₂ Surfaces: A Frontier Orbital Approach	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 3827 ~ 3844
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.0c09614	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Hinuma Yoyo, Mine Shinya, Toyao Takashi, Kamachi Takashi, Shimizu Ken-ichi	4. 巻 23
2. 論文標題 Factors determining surface oxygen vacancy formation energy in ternary spinel structure oxides with zinc	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 23768 ~ 23777
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D1CP03657B	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Wakafuji Kodai, Iwasa Satsuki, Ouchida Kina N., Cho Hyemin, Dohi Hirotsugu, Yamamoto Eiji, Kamachi Takashi, Tokunaga Makoto	4. 巻 11
2. 論文標題 Dynamic Kinetic Resolution of Azlactones via Phase-Transfer Catalytic Alcoholysis	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ACS Catalysis	6. 最初と最後の頁 14067 ~ 14075
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acscatal.1c03076	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hamamoto Nobutsugu, Yamashita Rika, Arae Sachie, Irie Ryo, Kamachi Takashi, Fujimoto Hitoshi	4. 巻 552
2. 論文標題 Systematical study on the electronic properties of monoazaphenanthrene compounds by theoretical calculations and experimental observations	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 111370 ~ 111370
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.chemphys.2021.111370	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hinuma Yoyo, Kamachi Takashi, Hamamoto Nobutsugu, Takao Motoshi, Toyao Takashi, Shimizu Ken-ichi	4. 巻 124
2. 論文標題 Surface Oxygen Vacancy Formation Energy Calculations in 34 Orientations of -Ga2O3 and -Al2O3	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 10509 ~ 10522
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.0c00994	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Liu Chong, Li Yuxin, Takao Motoshi, Toyao Takashi, Maeno Zen, Kamachi Takashi, Hinuma Yoyo, Takigawa Ichigaku, Shimizu Ken-ichi	4. 巻 124
2. 論文標題 Frontier Molecular Orbital Based Analysis of Solid?Adsorbate Interactions over Group 13 Metal Oxide Surfaces	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 15355 ~ 15365
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.0c04480	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hinuma Yoyo, Toyao Takashi, Hamamoto Nobutsugu, Takao Motoshi, Shimizu Ken-ichi, Kamachi Takashi	4. 巻 124
2. 論文標題 Changes in Surface Oxygen Vacancy Formation Energy at Metal/Oxide Perimeter Sites: A Systematic Study on Metal Nanoparticles Deposited on an In2O3(111) Support	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 27621 ~ 27630
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.0c10010	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hamamoto Nobutsugu, Tatsumi Toshinobu, Takao Motoshi, Toyao Takashi, Hinuma Yoyo, Shimizu Ken-ichi, Kamachi Takashi	4. 巻 125
2. 論文標題 Effect of Oxygen Vacancies on Adsorption of Small Molecules on Anatase and Rutile TiO ₂ Surfaces: A Frontier Orbital Approach	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 3827 ~ 3844
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.0c09614	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kamachi Takashi, Tatsumi Toshinobu, Toyao Takashi, Hinuma Yoyo, Maeno Zen, Takakusagi Satoru, Furukawa Shinya, Takigawa Ichigaku, Shimizu Ken-ichi	4. 巻 123
2. 論文標題 Linear Correlations between Adsorption Energies and HOMO Levels for the Adsorption of Small Molecules on TiO ₂ Surfaces	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 20988 ~ 20997
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.9b05707	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hinuma Yoyo, Kamachi Takashi, Hamamoto Nobutsugu	4. 巻 61
2. 論文標題 Auto-Generation of Corrugated Nonpolar Stoichiometric Slab Models	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 MATERIALS TRANSACTIONS	6. 最初と最後の頁 78 ~ 87
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2320/matertrans.MT-M2019215	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Toyao Takashi, Maeno Zen, Takakusagi Satoru, Kamachi Takashi, Takigawa Ichigaku, Shimizu Ken-ichi	4. 巻 10
2. 論文標題 Machine Learning for Catalysis Informatics: Recent Applications and Prospects	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ACS Catalysis	6. 最初と最後の頁 2260 ~ 2297
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acscatal.9b04186	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kamachi Takashi, Siddiki S.M.A. Hakim, Morita Yoshitsugu, Rashed Md. Nurnobi, Kon Kenichi, Toyao Takashi, Shimizu Ken-ichi, Yoshizawa Kazunari	4. 巻 303
2. 論文標題 Combined theoretical and experimental study on alcoholysis of amides on CeO ₂ surface: A catalytic interplay between Lewis acid and base sites	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Catalysis Today	6. 最初と最後の頁 256 ~ 262
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cattod.2017.09.006	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yamamoto Eiji, Wakafuji Kodai, Furutachi Yuho, Kobayashi Kaoru, Kamachi Takashi, Tokunaga Makoto	4. 巻 8
2. 論文標題 Dynamic Kinetic Resolution of N-Protected Amino Acid Esters via Phase-Transfer Catalytic Base Hydrolysis	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 ACS Catalysis	6. 最初と最後の頁 5708 ~ 5713
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acscatal.8b00693	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hinuma Yoyo, Toyao Takashi, Kamachi Takashi, Maeno Zen, Takakusagi Satoru, Furukawa Shinya, Takigawa Ichigaku, Shimizu Ken-ichi	4. 巻 122
2. 論文標題 Density Functional Theory Calculations of Oxygen Vacancy Formation and Subsequent Molecular Adsorption on Oxide Surfaces	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 29435 ~ 29444
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.8b11279	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計9件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 山本英治
2. 発表標題 高効率な均一系・不均一系触媒反応の開発
3. 学会等名 2022年度第2回有機合成化学講演会（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 岩佐 颯起・若藤 空大・大内田 希奈・山本 英治・蒲池 高志・徳永 信
2. 発表標題 相間移動触媒によるアズラクトン類の不斉加アルコール分解反応
3. 学会等名 日本化学会 第102春季年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 若藤空大・岩佐颯起・大内田 希奈・チョヘミン・土肥弘嗣・山本英治・蒲池高志・徳永 信
2. 発表標題 キラル相間移動触媒を用いた不斉アルコールシスによるアズラクトン類の動的速度論分割
3. 学会等名 第11回化学フェスタ
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 若藤空大・土肥弘嗣・チョヘミン・蒲池高志・山本英治・徳永信
2. 発表標題 相間移動触媒を用いた不斉加アルコール分解によるアズラクトン類の動的速度 論的光学分割
3. 学会等名 第117回有機合成シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 蒲池高志、斉藤雅史、辻雄太、吉田将隆、吉澤一成
2. 発表標題 メタン活性化を目指した触媒インフォマティクスの展開
3. 学会等名 第124回触媒討論会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 蒲池高志、巽俊暢、鳥屋尾隆、日沼洋陽、前野禪、高草木達、古川森也、瀧川一学、清水研一
2. 発表標題 TiO ₂ 表面における分子吸着のフロンティア軌道理論
3. 学会等名 日本化学会第100春季年会
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 Kodai Wakafuji, Yusuke Mori, Gaku Teshima, Yuki Hidani, Eiji Yamamoto, and Makoto Tokunaga
2. 発表標題 Bifunctional Phosphonium/Thiourea Salts as Phase-Transfer Catalysts: Enantioselective Protonation of Alkenyl Esters
3. 学会等名 24th Joint symposium between KB-CSJ and BB-KCS
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kodai Wakafuji, Kaoru Kobayashi, Hyemin Cho, Hirotsugu Dohi, Takashi Kamachi, Eiji Yamamoto, Makoto Tokunaga
2. 発表標題 Phase-Transfer Catalytic Dynamic Kinetic Resolution of Amino Acid Esters with Water and Alcohols as Nucleophiles
3. 学会等名 日本化学会第100春季年会
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 蒲池高志、斉藤雅史、吉澤一成
2. 発表標題 1,2,3,4,5-ペンタカルボキシシクロペンタジエン (PCCP) による不斉Mannich反応の理論的研究
3. 学会等名 分子科学討論会
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担 者	山本 英治 (Yamamoto Eiji) (70782944)	九州大学・理学研究院・助教 (17102)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------