

令和 4 年 5 月 21 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2021

課題番号：18K06576

研究課題名(和文)アセタール型塩化学種を利用する有機合成化学

研究課題名(英文)Organic chemistry using acetal-type salt species

研究代表者

藤岡 弘道 (FUJIOKA, HIROMICHI)

大阪大学・産業科学研究所・特任教授

研究者番号：10173410

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：ピリジニウム型塩生成の真の活性種を明らかにした。次にアセタール間での選択的脱保護、従来法とは逆の反応性を持つアセタールの脱保護法を開発できた。また混合アセタールからピリジニウム型塩中間体を経る手法を用いて単一のエーテル化合物を得ることに成功した。またin situ protection法を用いて、不飽和アルデヒド存在下でのエノンの変換反応や、不飽和エステル存在下での不飽和ワインレブアミドの変換に成功した。さらに不飽和アルデヒドと不飽和エステルを併せ持つ鎖状化合物から実用的なone-potエーテル環の不斉合成に成功し、アンフィジノリドCを合成した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

申請者のアセタールの脱保護は、弱塩基性条件下で進行するユニークなものである。また従来法と逆の反応性を示すため、従来法では共存できない官能基も共存できるため、我々の手法の拡大は大きな意義がある。またin situ protection法を用いると、高反応性の官能基の保護・脱保護の過程が不要であるため、これまでも様々な手法が開発されているが、それらは厳密な反応制御が必要である等の問題を残していた。申請者の手法は厳密な反応制御が不要で、かつ市販の試薬を用いるため、非常に実用性の高いものである。さらに環状エーテル合成法は非常に効率が良い手法であり、含エーテル環天然物の合成に威力を発揮する。

研究成果の概要(英文)：The true active species for pyridinium-type salt chemical species formation from acetals proved to be a bulky complex consisting of TMSOTf and a pyridine base. Next, we succeeded in the selective deprotection of acetals. In addition, we were able to develop a deprotection method for acetal, which has the opposite reactivity to the conventional method. We also succeeded in the conversion reaction of enone in the presence of , -unsaturated aldehyde and the conversion of , -unsaturated Weinrebamide in the presence of , -unsaturated ester. In addition, we succeeded in a practical one-pot asymmetric synthesis of ether ring using the in situ protection method from an acyclic compound containing both , -unsaturated aldehyde and , -unsaturated ester. This method was applied concise synthesis of amphidinolide C.

研究分野：精密合成化学

キーワード：塩化学種 アセタール 脱保護 in situ protection法 反応性の逆転 環状エーテル amphidinolide C

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

有機合成化学において、新規な反応化学種を利用する新反応開発の重要性は論を待たない。申請者は、アセタールまたはカルボニル基から生成するアセタール型ピリジニウム塩およびホスホニウム塩を活性塩化学種として利用する様々な新規反応を開発してきた。本アセタール型活性塩化学種は、アシル化やアルキル化により活性化された従来のピリジニウム塩や、Wittig 反応に汎用される従来の 4 級ホスホニウム塩とは全く異なる反応性を示す。またこれまでに開発した反応は、従来法では達成困難な反応が多く、新たな有機合成手法を提供するものである。アセタール型活性塩化学種を利用する有機合成化学は、申請者しか行っていない独自のものである。

2. 研究の目的

現在までの研究により、その独創性や有用性を示してきたが、本研究でも、そのさらなる展開を図り、新たな化学種を利用する有機合成化学の確立を目指す。

3. 研究の方法

ピリジニウム塩化学種生成の真の活性種が、 $R_3SiO^+Tf^-$ とピリジン塩基の複合体で有るという、より基礎的な知見や経験を得ることが出来たので、官能基選択的反応への更なる展開を図る。またホスホニウム塩化学種を利用する *in situ* protection法を利用して6工程one-potエーテル環合成に成功したが、光学活性体の合成にはあまり一般的でない条件が必要であった。本法で得られるエーテル環は、天然物合成を見据えた有用なシントンであるので、不斉反応を検討し、光学活性なエーテル環合成法を確立すると共に、さらに天然物合成への応用を検討する。また *in situ* protection法を利用した効率的な環状エーテル合成法の不斉合成への展開で、市販のAD-mixを触媒量用いる、より簡便な手法を確立できたので、光学活性環状エーテル構造を含む生物活性天然物合成への応用を検討する。

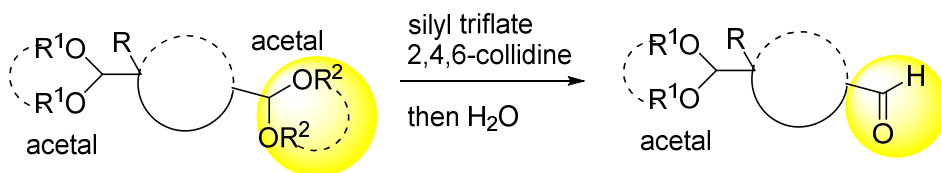
4. 研究成果

A) ピリジニウム型塩化学種を利用する有機合成化学：これまでの研究で、ピリジニウム型塩化学種の生成はNMR実験並びに質量分析により証明し、その後の変換反応を明らかにしたが、アセタールからピリジニウム型塩化学種生成の過程は不明であった。今回、その過程を明らかにした。即ち、アセタールからピリジニウム型塩化学種生成の真の活性種は、 $TMSO^+Tf^-$ とピリジン塩基からなる嵩高い複合体で有ることを証明した。次に本複合体を、立体識別的アセタールの脱保護に利用した。即ち、アセタールの隣の炭素の置換様式が異なるアセタールの脱保護を検討し、より置換基が少ないアセタールの選択的脱保護に成功した。また従来の $TMSO^+Tf^-Et_3SiH$ 条件では2種類のエーテル化合物がほぼ等量生成する、混合アセタールからエーテルへの還元変換においても、我々の反応でまず塩中間体を生成させ、このものを $NaBH_4$ で還元することにより単一のエーテル化合物を得る事にも成功した。従来のオキシニウムイオン中間体を経る脱保護では、より安定なオキシニウムイオン中間体を経る脱保護が速く進行するため、隣の炭素の電子供与性が大きい、すなわちより多くの置換基を持つ炭素原子を持つアセタールの脱保護がより速く進行する。一方、我々の手法では嵩高い酸活性種が働くため、より立体的な混みあいの小さいアセタールで選択的に脱保護が進行する。従来法とは逆の反応性を持つアセタールの脱保護法ならびに還元反応を開発できた (Scheme 1)。

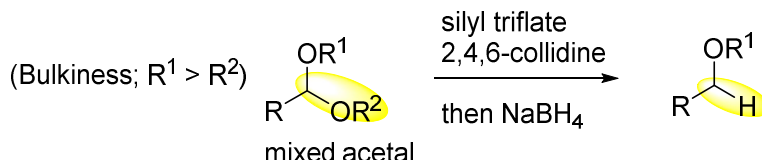
1. Reverse reactivity of deprotection

1-1. Acetals with different substitution patterns ($R^1 = R^2$, $R \neq H$)

1-2. Different types of acetals ($R^1 > R^2$, $R = H$)

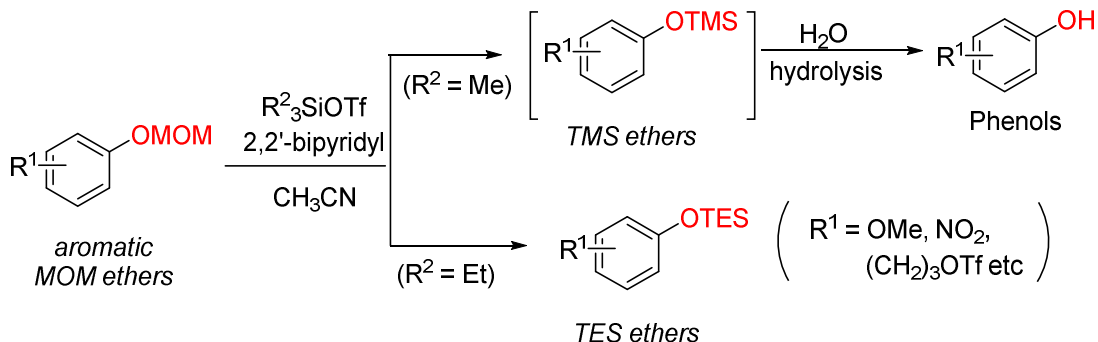


2. Formation of single ether product from mixed acetal



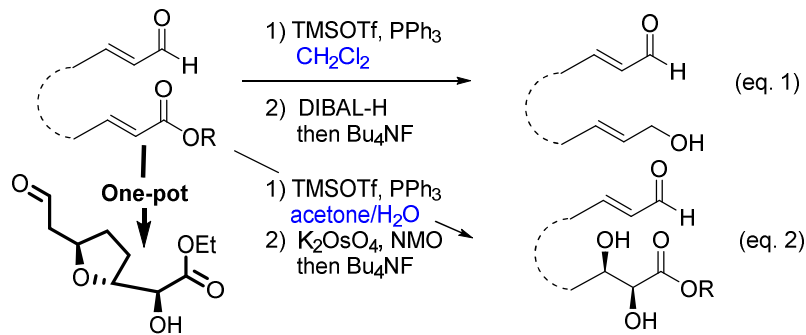
Scheme 1.

またこれまでの研究で、水酸基のアセタール型保護基であるMOM-エーテル類のピリジニウム型塩化学種を経る脱保護に成功していたが、これは脂肪族水酸基のMOM-エーテルに限られ、フェノール等の芳香族水酸基のMOM-エーテルの脱保護には成功していなかった。しかしながら本研究で、反応溶媒としてアセトニトリルを用いると脱保護が速やかに進行する事を見出した。またその脱保護の反応機構が、脂肪族水酸基のMOM-エーテルとは異なることを見出し、その性質を利用して、芳香族水酸基のMOM-エーテルからone-potで直接TES-エーテルに変換することに成功した (Scheme 2)。



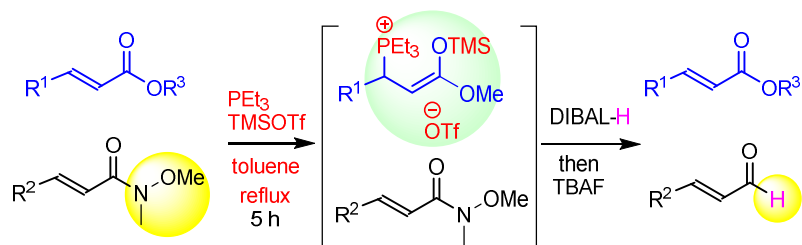
Scheme 2.

B)ホスホニウム塩化学種を利用する有機合成化学: , -不飽和アルデヒド存在下での , -不飽和エステル選択的変換反応を開発した (Scheme 3, eq. 1)。また , -不飽和アルデヒドをケト型ホスホニウム塩中間体に変換することにより、 , -不飽和アルデヒド存在下での , -不飽和エステル選択的ジヒドロキシ化反応の開発に成功した (Scheme 3, eq. 2)。さらに、 , -不飽和アルデヒドと , -不飽和エステルを同一基質内に併せ持つ化合物から、ホスホニウム型塩中間体を経由した実用的なone-potエーテル環合成に成功した (Scheme 3)。



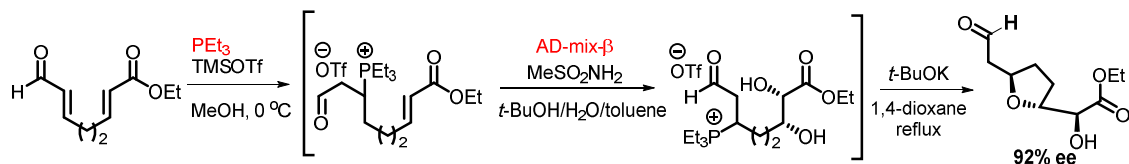
Scheme 3.

ところでこれまでの *in situ* protection法では PPh_3 を用いて行っており、その場合は、 α -不飽和エステルは反応しなかったが、今回 PPh_3 を Et_3P に代えることにより、 α -不飽和エステル存在下での β -不飽和アミド選択的変換反応の開発に成功した (Scheme 4)。



Scheme 4.

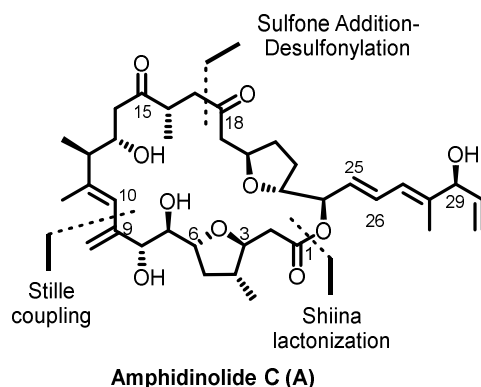
Et_3P を用いることにより、鎖状化合物から環状エーテル化合物の実用的不斉合成法を開発できた。すなわち以前の研究で、エノンと α -不飽和エステルを併せ持つ鎖状化合物から環状エーテル化合物を *one-pot* で合成する効率的な手法を開発していたが、その際には PPh_3 を用いていた。そこで次に不斉合成への展開としての不斉ジヒドロキシ化反応の際に、一般に用いられる市販されている AD-ミックス触媒を用いると目的の化合物を得ることができず、化学量論量の光学活性アルカロイドを不斉触媒を用いる必要があった。今回、更に検討を重ね、 Et_3P を用いることにより、触媒量の AD-ミックス触媒を用いて不斉ジヒドロキシ化を行う、より簡便な手法を確立した (Scheme 5)。



Scheme 5.

次にこれまでに開発した *in situ* protection法を利用して、天然物の簡易合成を検討した。合成対象にアンフィジノリド C (A) を選定した。アンフィジノリド類は一連の 25 員環マクロリド群である。これまでにアンフィジノリド A-H, J-S, T1, U-Y, G2, G3, H2-H5 などが知られているが、特にアンフィジノリド C (A) は KB 細胞、L1210 細胞に対し強力な阻害活性を示す興味深い化合物である。

アンフィジノリドC (A) 合成のために、まずC1~C9、C10~C17、C18~C34の3つのフラグメントを合成した。このうちC1~C9フラグメントには(4S)-4-メチル-3,6-トランスジ置換THF環が、またC18~C34フラグメントには20,23-トランスジ置換THF環が含まれる。これらの光学活性なTHF環はいずれも申請者が本研究で開発したホスホニウム塩中間体を経る *in situ* protection法を用いて簡便に合成できた。すなわち、(4S)-4-メチル-3,6-トランスジ置換THF環は、
 不飽和エステルと、
 不飽和ワインレプアミドを同一分子内に持つ基質を用いて、また20,23-トランスジ置換THF環の場合は、
 不飽和エステルと、
 不飽和アルデヒドを持つ基質を用い、いずれもEt₃PとTMSOTfで処理して、前者ではより高反応性の、
 不飽和エステルを、また後者ではより高反応性の、
 不飽和アルデヒドをホスホニウム塩として保護しておいて、市販のAD-mix 酸化により二重結合を不斉ジヒドロキシ化、次いで、
 不飽和エステルまたは、
 不飽和アルデヒドを再生すると同時にoxy-Michael付加が進行し一気に光学活性なTHF環構造が合成できた。さらに不斉エポキシ化等も利用して、光学活性なC10~C17フラグメントも合成した。最後に、これらのフラグメントをカップリング反応や、スルホンを用いるアルドール型反応、マクロラクトン化反応等により縮合し、アンフィジノリドC (A) を合成した。



5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計20件（うち査読付論文 17件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Murai Kenichi, Fujioka Hiromichi, Miyazaki Shuji	4. 巻 103
2. 論文標題 Conjugate Addition Reaction of Indole to Protected 2-Amino-1-nitroethenes Mediated by Silica Gel	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 HETEROCYCLES	6. 最初と最後の頁 459 ~ 459
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3987/COM-20-S(K)5	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 Fujioka Hiromichi, Morita Kenta, Murai Kenichi, Arisawa Mitsuhiro	4. 巻 103
2. 論文標題 Selective Reduction and Dihydroxylation of α,β -Unsaturated Esters in the Presence of Enals: One-Pot Synthesis of a 2,5-Disubstituted Tetrahydrofuran	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 HETEROCYCLES	6. 最初と最後の頁 311 ~ 311
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3987/COM-20-S(K)15	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 Arisawa Mitsuhiro, Hayami Kenta, Kuboki Yuichi, Ohta Katsumi, Lin Bangzhong, Fumimoto Megumi, Nunomura Kazuto, Haruta Jun-Ichi, Fujioka Hiromichi, Asai Akira, Murai Kenichi	4. 巻 103
2. 論文標題 Design, Synthesis, Physical Properties and Indoleamine 2, 3-Dioxygenase 1 Inhibitory Activity of Substituted Indole Derivatives with N-H, N-Methoxymethyl, or N-Methylthiomethyl Group toward Fragment-Based Drug Discovery	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 HETEROCYCLES	6. 最初と最後の頁 511 ~ 511
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3987/COM-20-S(K)35	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 Ohno Shohei, Avena Ramon Francisco, Aoyama Hiroshi, Fujioka Hiromichi, Arisawa Mitsuhiro	4. 巻 22
2. 論文標題 Thermal [2 + 2]-cycloaddition between silylalkynes and allenylphenols followed by the nucleophilic addition of water: metal-free and economical synthesis of arylcyclobutenals	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Green Chemistry	6. 最初と最後の頁 1220 ~ 1228
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C9GC04184B	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Morita Kenta, Murai Kenichi, Arisawa Mitsuhiro, Fujioka Hiromichi	4. 巻 68
2. 論文標題 Selective Reduction of , -Unsaturated Weinreb Amides in the Presence of , -Unsaturated Esters	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chemical and Pharmaceutical Bulletin	6. 最初と最後の頁 1100 ~ 1103
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1248/cpb.c20-00545	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Fujioka Hiromichi	4. 巻 68
2. 論文標題 Development of New Innovative Synthetic Organic Chemistry Using Lone Pairs of Oxygen Atoms	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chemical and Pharmaceutical Bulletin	6. 最初と最後の頁 907 ~ 945
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1248/cpb.c20-00178	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Ohta Reiya, Oguro Akihiro, Nishimura Kazuhiro, Murai Kenichi, Fujioka Hiromichi, Arisawa Mitsuhiro	4. 巻 17
2. 論文標題 Design and synthesis of N1,N8-diacetylspermidine analogues having a linker with desired functional groups	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Organic & Biomolecular Chemistry	6. 最初と最後の頁 867 ~ 875
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C8OB02900H	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 Murafuji Hidenobu, Muto Tsuyoshi, Goto Megumi, Imajo Seiichi, Sugawara Hajime, Oyama Yoshiaki, Minamitsuji Yutaka, Miyazaki Shuji, Murai Kenichi, Fujioka Hiromichi	4. 巻 29
2. 論文標題 Discovery and structure-activity relationship of imidazolylindole derivatives as kallikrein 7 inhibitors	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Bioorganic & Medicinal Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 334 ~ 338
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.bmcl.2018.11.011	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 Kawajiri Takahiro, Kato Maho, Nakata Hiroki, Goto Ryota, Aibara Shin-yo, Ohta Reiya, Fujioka Hiromichi, Sajiki Hironao, Sawama Yoshinari	4. 巻 84
2. 論文標題 Chemoselective Nucleophilic Functionalizations of Aromatic Aldehydes and Acetals via Pyridinium Salt Intermediates	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 The Journal of Organic Chemistry	6. 最初と最後の頁 3853 ~ 3870
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.joc.8b02965	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 Fujii Yuki, Suwa Yukinori, Wada Yuki, Takehara Tsunayoshi, Suzuki Takeyuki, Kawashima Yusuke, Kawashita Norihito, Takagi Tatsuya, Fujioka Hiromichi, Arisawa Mitsuhiro	4. 巻 4
2. 論文標題 Metal-Free Nitrogen-Containing Polyheterocyclic Near-Infrared (NIR) Absorption Dyes: Synthesis, Absorption Properties, and Theoretical Calculation of Substituted 5-Methylisoindolo[2,1-a]quinolines	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ACS Omega	6. 最初と最後の頁 5064 ~ 5075
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsomega.9b00315	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 Yanagihara Mizushi, Ohta Reiya, Murai Kenichi, Arisawa Mitsuhiro, Fujioka Hiromichi	4. 巻 4
2. 論文標題 Chemoselective Transformations of Aromatic Methoxymethyl Ethers Using Trialkylsilyl Triflate and 2,2'-Bipyridyl	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ACS Omega	6. 最初と最後の頁 8465 ~ 8471
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsomega.9b00643	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 Ii Yasuhiro, Hirabayashi Satoru, Yoshioka Shohei, Aoyama Hiroshi, Murai Kenichi, Fujioka Hiromichi, Arisawa Mitsuhiro	4. 巻 21
2. 論文標題 Pd-Catalyzed Migratory Cycloisomerization of N-Allyl-o-allylaniline Derivatives	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Organic Letters	6. 最初と最後の頁 3501 ~ 3504
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.orglett.9b00676	査読の有無 無
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 Yoshioka Shohei, Takehara Tsunayoshi, Matsuzaki Tsuyoshi, Suzuki Takeyuki, Tsujino Hirofumi, Uno Tadayuki, Tsutsumi Yasuo, Murai Kenichi, Fujioka Hiromichi, Arisawa Mitsuhiro	4. 巻 55
2. 論文標題 Direct synthesis of dialkylarylvinylsilane derivatives: metathesis of dialkylaryl-iso-propenyilsilane and its application to tetracyclic silacyclic dye synthesis	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 14070 ~ 14073
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c9cc06777a	査読の有無 無
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 Taniguchi Takahisa, Saito Nozomi, Doi Ryohei, Kimoto Arato, Hoshiya Naoyuki, Fujiki Katsumasa, Shuto Satoshi, Fujioka Hiromichi, Arisawa Mitsuhiro, Sato Yoshihiro	4. 巻 48
2. 論文標題 Nickel Nanoparticle-catalyzed Carboxylation of Unsaturated Hydrocarbon with CO ₂ Using Sulfur-modified Au-supported Nickel Material	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 1406 ~ 1409
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/CL.190650	査読の有無 無
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 Kawajiri Takahiro, Ohta Reiya, Fujioka Hiromichi, Sajiki Hironao, Sawama Yoshinari	4. 巻 54
2. 論文標題 Aromatic aldehyde-selective aldol addition with aldehyde-derived silyl enol ethers	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 374 ~ 377
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c7cc08936h	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 Takamoto Kohei, Yoshioka Shohei, Fujioka Hiromichi, Arisawa Mitsuhiro	4. 巻 20
2. 論文標題 Palladium-Catalyzed Seven-Membered Silacyclic Construction: 1,7-Enyne Hydroxycyclization To Give a Benzosilolepine Skeleton	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Organic Letters	6. 最初と最後の頁 1773 ~ 1776
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.orglett.8b00271	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 Morita Kenta, Ohta Reiya, Watanabe Kei, Fujioka Hiromichi	4. 巻 7
2. 論文標題 Selective Transformation of α -Disubstituted Enones and Ynones in the Presence of γ - Monosubstituted Enones	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Asian Journal of Organic Chemistry	6. 最初と最後の頁 829 ~ 835
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/ajoc.201700711	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 Ohta Reiya, Matsumoto Nao, Ueyama Yoshifumi, Kuboki Yuichi, Aoyama Hiroshi, Murai Kenichi, Arisawa Mitsuhiro, Maegawa Tomohiro, Fujioka Hiromichi	4. 巻 83
2. 論文標題 Highly Discriminative and Chemoselective Deprotection/Transformations of Acetals with the Combination of Trialkylsilyl Triflate/2,4,6-Collidine	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 The Journal of Organic Chemistry	6. 最初と最後の頁 6432 ~ 6443
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.joc.8b00675	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 Yoshioka Shohei, Aoyama Hiroshi, Fujioka Hiromichi, Arisawa Mitsuhiro	4. 巻 83
2. 論文標題 Cascade Multiple Diels-Alder Reactions of Styrene Derivatives with Maleimide or Maleic Anhydride	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 The Journal of Organic Chemistry	6. 最初と最後の頁 6599 ~ 6606
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.joc.8b00890	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 Akiyama Toshiki, Wada Yuki, Jenkinson Kellie, Honma Tetsuo, Tsuruta Kazuki, Tamenori Yusuke, Haneoka Hitoshi, Takehara Tsunayoshi, Suzuki Takeyuki, Murai Kenichi, Fujioka Hiromichi, Sato Yoshihiro, Wheatley Andrew E. H., Arisawa Mitsuhiro	4. 巻 1
2. 論文標題 Reusable Immobilized Iron(II) Nanoparticle Precatalysts for Ligand-Free Kumada Coupling	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 ACS Applied Nano Materials	6. 最初と最後の頁 6950 ~ 6958
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsnm.8b01742	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40件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 24件）

1. 発表者名 藤岡弘道
2. 発表標題 酸素原子の孤立電子対を利用する斬新的合成反応の開発と展開
3. 学会等名 日本薬学会139年会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山田真希人, 秋山敏毅, 大木裕太, 高橋直行, 村井健一, 藤岡弘道, 有澤光弘
2. 発表標題 連続照射型マイクロ波を用いた塩化アリールのリガンドフリー鈴木-宮浦カップリング反応
3. 学会等名 第17回次世代を担う有機化学シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Toshiki Akiyama, Tetsuo Honma, Yusuke Tamenori, Kenichi Murai, Hayato Tsurugi, Kazushi Mashima, Hiromichi Fujioka, Yoshihiro Sato, Mitsuhiro Arisawa
2. 発表標題 Iron(0) Nanoparticle-catalyzed Ligand-free One-pot C-C/C-N Bond Forming Reaction
3. 学会等名 第47回 内藤コンファレンス
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Toshiki Akiyama, Tetsuo Honma, Yusuke Tamenori, Kenichi Murai, Hayato Tsurugi, Kazushi Mashima, Hiromichi Fujioka, Yoshihiro Sato, Mitsuhiro Arisawa
2. 発表標題 Iron(0) Nanoparticle-Catalyzed Ligand-Free One-Pot C-C/C-N Bond Forming Tandem Reaction
3. 学会等名 OMCOS20（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yuki Wada, Toshiki Akiyama, Tetsuo Honma, Yusuke Tamenori, Hiromichi Fujioka, Yoshihiro Sato, Mitsuhiro Arisawa
2. 発表標題 Ligand-Free Kumada Coupling Catalyzed by Iron(II) Nanoparticle
3. 学会等名 第4回プロセス化学国際シンポジウム (ISPC 2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Mizushi Yanagihara, Reiya Ohta, Kenichi Murai, Mitsuhiro Arisawa, Hiromichi Fujioka
2. 発表標題 Chemoselective Transformations of Aromatic Methoxymethyl Ethers Using Trialkylsilyl Triflate and 2,2'-Bipyridyl
3. 学会等名 第4回プロセス化学国際シンポジウム (ISPC 2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 三好諒、小林哲也、藤岡弘道、有澤光弘、村井健一
2. 発表標題 超原子価ヨウ素試薬を用いる第二級アミンの酸化的転位反応
3. 学会等名 第39回有機合成若手セミナー
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kenta Morita, Kenichi Murai, Mitsuhiro Arisawa, Hiromichi Fujioka
2. 発表標題 One-pot synthesis of cyclic ethers using phosphonium salts: Formal synthesis of Amphidinolide F
3. 学会等名 国際複素環化学会議 (ISHC-27) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yusuke Yoshikawa, Maki Yamakawa, Kuniaki Suzuki, Yuichiro Okino, Mitsuhiro Arisawa, Hiromichi Fujioka
2. 発表標題 Total Synthesis of (-)-Aplysiallene and it's Biological Active Study
3. 学会等名 国際複素環化学会議 (ISHC-27) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yuichi Kuboki, Mitsuhiro Arisawa, Katsumi Ohta , Akira Asai , Hiromichi Fujioka
2. 発表標題 Efficient Synthesis of N-Trifluoromethylthiomethyl Indoles: Physical Property, Metabolism and IDO Inhibitory Activity Evaluation of Substituted Indoles
3. 学会等名 国際複素環化学会議 (ISHC-27) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Naoko Oyobe, Hiroshi Aoyama, Kenichi Murai, Hiromichi Fujioka, Mitsuhiro Arisawa
2. 発表標題 Synthesis of cis-3,4-disubstituted piperidines
3. 学会等名 国際複素環化学会議 (ISHC-27) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kei Soeda, Yusuke Yoshikawa, Mitsuhiro Arisawa, Hiromichi Fujioka
2. 発表標題 Design and Synthesis of Conformational Restricted Acetogenin Derivatives with Fused-bis Tetrahydrofuran (THF) Skeleton
3. 学会等名 国際複素環化学会議 (ISHC-27) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Satoru Hirabayashi, Yasuhiro Ii, Shohei Yoshioka, Hiroshi Aoyama, Kenichi Murai, Hiromichi Fujioka, Mitsuhiro Arisawa
2. 発表標題 Pd-Catalyzed Migratory Cycloisomerization of N-Allyl-o-allylaniline Derivatives
3. 学会等名 国際複素環化学会議 (ISHC-27) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Mizushi Yanagihara, Reiya Ohta, Kenichi Murai, Mitsuhiro Arisawa, Hiromichi Fujioka
2. 発表標題 Reaction of Aromatic Methoxymethyl Ethers with Trialkylsilyl Triflate and 2,2' -Bipyridyl: Deprotection and Direct Conversion to Aromatic Triethylsilyl Ethers
3. 学会等名 国際複素環化学会議 (ISHC-27) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yuki Wada, Yuki Fujii, Tsunayoshi Takehara, Takeyuki Suzuki, Kenichi Murai, Hiromichi Fujioka, Mitsuhiro Arisawa
2. 発表標題 Synthesis of Metal-Free NIR Dye by One-Pot Ring-Closing Metathesis(RCM)/Oxidation/1,3-Dipolar Cycloaddition Reaction
3. 学会等名 国際複素環化学会議 (ISHC-27) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Ramon Avena, Yuki Fujii, Tsunayoshi Takehara, Takeyuki Suzuki, Kenichi Murai, Hiromichi Fujioka, Mitsuhiro Arisawa
2. 発表標題 Synthesis and Fluorescent Properties of 5-Phenylisoindolo[2,1-a]quinoline and Isoindolo[1,2-a]isoquinoline Dyes via One-pot Ring-closing Metathesis/ Oxidation/1,3-Dipolar Cycloaddition Reaction
3. 学会等名 国際複素環化学会議 (ISHC-27) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Makoto Miyoshi, Tetsuya Kobayashi, Hiromichi Fujioka, Mitsuhiro Arisawa, Kenichi Murai
2. 発表標題 Oxidative Rearrangement of Secondary Amines Using Hypervalent Iodine(III) Reagent
3. 学会等名 国際複素環化学会議 (ISHC-27) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 森田健太、村井健一、有澤光弘、藤岡弘道
2. 発表標題 AmphidinolideC の合成研究 ホスホニウム塩中間体を用いた光学活性テトラヒドロフラン環の構築
3. 学会等名 第69回日本薬学会関西支部総会・大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 平林怜, 井康弘, 吉岡祥平, 青山浩, 村井健一, 藤岡弘道, 有澤光弘
2. 発表標題 Pd触媒を用いたN-Allenyl-o-allenylaniline誘導体の転位型環化異性化反応の開発; 2-アルキルインドールの合成
3. 学会等名 第45回反応と合成の進歩シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 吉川祐介、石橋亜衣里、村井健一、藤岡弘道、金田安史、二村圭祐、有澤光弘
2. 発表標題 前立腺がん増殖抑制活性を有する天然有機化合物の探索とその誘導体合成
3. 学会等名 第37回メディシナルケミストリーシンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Shohei Ohno, Ramon Francisco Avena, Hiromichi Fujioka, Mitsuhiro Arisawa
2. 発表標題 Ni-Catalyzed Cleavage and Formation of C-O Bond to give Disubstituted Benzofurans
3. 学会等名 18th Asian Chemical Congress (18th ACC) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kenta Morita, Kenichi Murai, Mitsuhiro Arisawa, Hiromichi Fujioka
2. 発表標題 One-pot synthesis of cyclic ethers using phosphonium salts: Formal synthesis of Amphidinolide F
3. 学会等名 18th Asian Chemical Congress (18th ACC) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 吉岡祥平, 高本康平, 藤岡弘道, 有澤光弘
2. 発表標題 有機金属触媒を用いた含ケイ素5員環、6員環、7員環の新規合成法の開発
3. 学会等名 第16回次世代を担う有機化学シンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Toshiki Akiyama, Tetsuo Honma, Yusuke Tamenori, Hiromichi Fujioka, Yoshihiro Sato, Mitsuhiro Arisawa
2. 発表標題 Iron Nanoparticles-catalyzed Ligand-free Kumada Coupling
3. 学会等名 XXVIII International Conference on Organometallic Chemistry (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 村井健一, 小林哲也, 三好 諒, 有澤光弘, 藤岡弘道
2. 発表標題 3価のヨウ素試薬を用いるアミン類の酸化的転位反応
3. 学会等名 第49回 複素環化学討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 吉岡祥平, 村井健一, 藤岡健一, 藤岡 弘道, 有澤 光弘
2. 発表標題 多環式含ケイ素6員環化合物のワンポット合成と複数回Diels-Alder反応の開発
3. 学会等名 第49回 複素環化学討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Reiya Ohta, Akihiro Oguro, Kazuhiro Nishimura, Hiromichi Fujioka, Mitsuhiro Arisawa
2. 発表標題 Design and Synthesis of Polyamine Analogues to Obtain Their Aptamers
3. 学会等名 XXII International Conference on Organic Synthesis (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Kenta Morita, Reiya Ohta, Kenichi Murai, Mitsuhiro Arisawa, Hiromichi Fujioka
2. 発表標題 Selective Transformation of Disubstituted Enones and Ynones in the Presence of Monosubstituted Enones
3. 学会等名 XXII International Conference on Organic Synthesis (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Yoshikawa Yusuke, Yamakawa Maki, Suzuki Kuniaki, Okino Yuichiro, Arisawa Mitsuhiro, Fujioka Hiromichi
2. 発表標題 Total synthesis of (-)-aplysiallene and Na ⁺ /K ⁺ ATPase inhibition activity study
3. 学会等名 XXII International Conference on Organic Synthesis (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Toshiki Akiyama, Tetsuo Honma, Yusuke Tamenori, Yohei Ueda, Kenichi Murai, Hayato Tsurugi, Kazushi Mashima, Hiromichi Fujioka, Yoshihiro Sato, Mitsuhiro Arisawa
2. 発表標題 Iron(0) Nanoparticle-catalyzed Ligand-free C-C/C-N Bond Forming Tandem Reaction
3. 学会等名 第65回有機金属化学討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Shohei Yoshioka, Kohei Takamoto, Kenichi Murai, Hiromichi Fujioka, Mitsuhiro Arisawa
2. 発表標題 Palladium-Catalyzed Seven-Membered Silacycle Construction: 1, 7-Enyne Hydroxycyclization to Give a Benzosilolepine Skeleton
3. 学会等名 第65回有機金属化学討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 大野祥平、村井健一、藤岡弘道、有澤光弘
2. 発表標題 Ni触媒を用いたビニルエーテルの分子内C-O結合切断 - C-C結合形成反応
3. 学会等名 第68回日本薬学会近畿支部総会・大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 和田祐希, 藤居由基, 高原綱吉, 鈴木健之, 村井健一, 藤岡弘道, 有澤光弘
2. 発表標題 多置換 5 - メチルイソインドロキノリンの合成とその吸光・蛍光特性
3. 学会等名 第68回日本薬学会近畿支部総会・大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Avena Ramon, 藤居由基, 高原綱吉, 鈴木健之, 村井健一, 藤岡弘道, 有澤光弘
2. 発表標題 Synthesis of 5-phenylisoindolo[2,1-a]quinoline and isoindolo[1,2-a]isoquinoline dyes with unique photochemical properties via one-pot ring-closing metathesis/1,3-dipolar cycloaddition reaction
3. 学会等名 第68回日本薬学会近畿支部総会・大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 太田礼伊也, 小黒明広, 西村和洋, 村井健一, 藤岡弘道, 有澤光弘
2. 発表標題 アプタマー取得に向けたポリアミン誘導体の設計と合成
3. 学会等名 第44回反応と合成の進歩シンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Toshiki Akiyama, Tetsuo Honma, Yusuke Tamenori, Hiromichi Fujioka, Yoshihiro Sato, Mitsuhiro Arisawa
2. 発表標題 Iron(II) Nanoparticle-Catalyzed Ligand-Free Kumada Coupling
3. 学会等名 8th Spanish-Portuguese-Japanese Organic Chemistry Symposium (8th SPJ-OCS) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Shohei Ohno, Kenichi Murai, Hiromichi Fujioka, Mitsuhiro Arisawa
2. 発表標題 Ni-Catalyzed C-O Bond Cleavage of 3-Phenoxy Acrylic Acid Derivatives and Subsequent Intramolecular C-C Bond Formation; Synthesis of 2,3-Disubstituted Benzofurans
3. 学会等名 8th Spanish-Portuguese-Japanese Organic Chemistry Symposium (8th SPJ-OCS) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Mizushi Yanagihara, Reiya Ohta, Kenichi Murai, Mitsuhiro Arisawa, Hiromichi Fujioka
2. 発表標題 Chemoselective Transformations of Aromatic Methoxymethyl Ethers with Combination of Trialkylsilyl Triflate and 2,2'-Bipyridyl
3. 学会等名 IKCOC-14 (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Yuki Wada, Yuki Fujii, Tsunayoshi Takehara, Takeyuki Suzuki, Kenichi Murai, Hiromichi Fujioka, Mitsuhiro Arisawa
2. 発表標題 Synthesis and Optical Feature of Multi-Substituted Isoindoro[2,1-a]quinoline
3. 学会等名 IKCOC-14 (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Satoru Hirabayashi, Mincen Xiao, Toshiaki Akiyama, Makito Yamada, Kenichi Murai, Hiromichi Fujioka, Mitsuhiro Arisawa
2. 発表標題 Self-assembled Pd-nanoparticles Catalyzed Reactions
3. 学会等名 IKCOC-14 (国際学会)
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	滝澤 忍 (TAKIZAWA Shinobu) (50324851)	大阪大学・産業科学研究所・准教授 (14401)	

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
---------	---------