

令和 6 年 6 月 17 日現在

機関番号：17104

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2020～2023

課題番号：20H02744

研究課題名(和文)ジアゾキノンをモチーフとする多置換芳香族の自在合成

研究課題名(英文) Synthesis of poly-substituted aromatic compounds from diazoquinones

研究代表者

北村 充 (Kitamura, Mitsuru)

九州工業大学・大学院工学研究院・教授

研究者番号：10313199

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 11,000,000円

研究成果の概要(和文)：生理活性物質や機能性材料に芳香族化合物は多く、これらの開発において、芳香族化合物への置換基導入反応の開発が果たす役割は大きい。これまで様々な反応が開発されているが、未だに芳香族への置換基導入法の開発は合成化学における重要な課題であり、新しい芳香族ユニットの創生と汎用性の高い置換基導入法の開発が強く望まれている。本研究ではこれまで芳香族化合物合成に利用されていないジアゾキノに着目し、その簡便な合成法の開発とジアゾキノを用いた反応開発に取り組んだ。

研究成果の学術的意義や社会的意義

新しい化合物の合成や反応開発がきっかけで、新材料の創製や合成の工程の簡略化が実現することは多い。芳香族化合物は、生理活性物質や機能性材料に多く見られ、その新たな合成や置換基導入法の開発は、有用物質合成の端緒となることが期待される。本研究ではこれまで芳香族化合物合成に利用されていないジアゾキノに着目し、その簡便な合成法の開発とジアゾキノを用いた反応開発に取り組み、ジアゾキノが芳香族合成における新しいユニットとなることを示す多くの例を得ることができた。本研究は、ジアゾキノを中心とした新しい芳香族合成の世界につながる内容であり、今後さらに有用物質の合成などにつながる内容である。

研究成果の概要(英文)：Aromatic compounds are widely used as biologically active compounds and functional materials, and the development of substituent introduction reactions to aromatic compounds plays an important role in the synthesis of these compounds. Although various reactions have been developed for the purpose, the development of the introduction of substituents to aromatic compounds is still an important issue in synthetic chemistry, and the finding of new aromatic motif and the development of versatile substituent introduction methods are strongly desired. In this study, we focused on diazoquinones, which have not been used for the synthesis of aromatic compounds, and studied on the development of a practical synthetic method and useful reactions using diazoquinones.

研究分野：有機合成化学

キーワード：ジアゾキノ 金属カルベン ジアゾ移動 アジドイミダゾリニウム 天然物合成 コロネン イソキノサイクリン

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

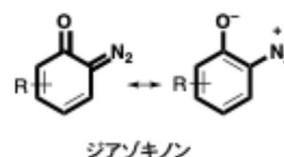
## 様式 C - 19 , F - 19 - 1 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

芳香族化合物は剛直な平面性と  $\pi$  電子に起因する特異な電気的特性を有し、単環のベンゼン誘導体から多環芳香族炭化水素まで、その骨格を有する生理活性物質や機能性材料は多い。これらの開発において、芳香族化合物への置換基導入反応の開発が果たす役割は大きい。

例えば、液晶材料の開発を例にとると、現在実用化されている液晶材料の多くは、ビアリール骨格を有している。この骨格が、鈴木-宮浦反応に代表される Pd 触媒によるハロゲン化アリール (Ar-X) とアリール金属化合物 (Ar-M) のクロスカップリングの開発により、容易に構築できるようになり、液晶開発が進展した。また、最近では、クロスカップリングに関して、不活性な C-H 結合の活性化を足がかりとする Ar-X を用いない反応も開発されている。しかし、これまで新たに開発された芳香族への置換基導入法には、問題が残されている。Ar-X を用いたクロスカップリング反応では、Ar-X の位置選択的な合成が、また、C-H 結合活性化反応では、その活性化の足がかりとする配向性基の導入と除去が必要である。このように、未だに芳香族への置換基導入法の開発は合成化学における重要な課題であり、新しい芳香族ユニットの創生と汎用性の高い置換基導入法の開発が強く望まれている。

ジアゾキノンとは、 $\alpha$ -ジアゾカルボニル化合物とアリールジアゾニウム



の性質を示すことが予想されるユニークな構造である。適切に活性化すれば、窒素を放出して種々の芳香族活性種を与え、その性質を利用して、様々な置換基を芳香族に導入できることができると期待される。すなわち、ジアゾキノン 1 を用いた反応開発により、さまざまな置換芳香族化合物を自在に合成できるようになると期待される。特に、従来合成が困難であった多置換フェノールや、医薬品、新型  $\pi$  系化合物などの機能性物質の合成法を短工程で提供できるようになると考えられる。しかし、ジアゾキノンはこれまで、芳香族合成にはほとんど利用されていない。ジアゾキノンの簡便な合成法がなかったことが一つの原因であり、その汎用的な合成法を開発できれば、新しい芳香族合成法を開発できるようになる。

### 2. 研究の目的

本研究は、ジアゾキノンを中心とする新しい芳香族合成化学を提案しようとするものであり、1) ジアゾキノンの簡便な合成法の開発、2) 多置換芳香族化合物や材料を指向したジアゾキノンの反応開発、3) 開発した反応を用いる有用機能性物質の合成、を目的とする。

### 3. 研究の方法

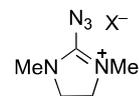
ジアゾキノンの合成については、これまでにジアゾナフトキノンの新しい合成法を開発しており、その知見をもとに一般的なジアゾキノンの合成法開発へ展開する。

ジアゾキノンの反応開発については、ジアゾキノンに金属触媒を作用させると金属カルベンを生じる事を見出しており、その知見をもとに多置換芳香族の合成を検討する。

### 4. 研究成果

(1) ジアゾキノンの合成：単純フェノールのジアゾ化によるジアゾキノンの合成

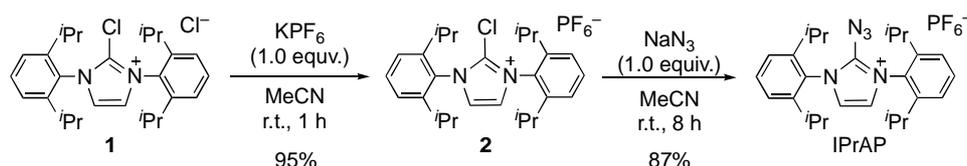
これまでに我々はアジドイミダゾリニウム塩 ADMC や ADMP を用いてナフトールをジアゾ化できることを見出し、ナフトキノンの簡便な合成法を開発している。しかし、単環のフェノールをジアゾ化する方法はこれまでなく、その合成法の開発が強く望まれていた。我々は、新たなジアゾ化剤として、嵩高いアリール基を有するアジドイミダゾリニウム塩 2-azido-1,3-bis(2,6-diisopropylphenyl)imidazolium hexafluorophosphate (IPrAP) を開発し、これを用いてフェノールをジアゾ化できることを見出した。



X = Cl: ADMC  
X = PF<sub>6</sub>: ADMP

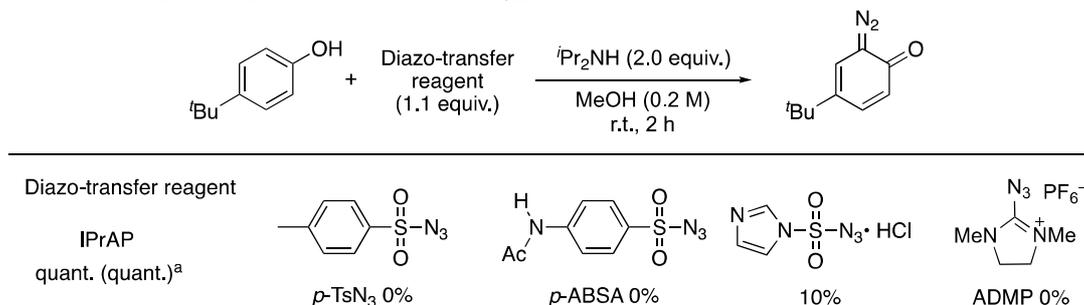
IPrAP は既知の 2-chloro-1,3-bis(2,6-diisopropylphenyl)imidazolium chloride (1) から 2 段階で合成した (Scheme 1)。まず、1 にアセトニトリル中、KPF<sub>6</sub> を作用させアニオン交換を行い、ヘキサフルオロホスファート 2 を合成した。続いて 2 をアセトニトリル中でアジ化ナトリウムと反応させた。生じた KCl をろ過して取り除いた後、エーテルを用いて再沈殿を行うと IPrAP を単離することができた。IPrAP の摩擦感度試験および、落つい感度試験を行ったところ、いずれも試験範囲内で陰性を示した。

#### Scheme 1. IPrAP の合成



次に、IPrAP を用いて、フェノールのアジド化を試みた。*tert*-ブチルフェノールに対して、2 当量の *i*-Pr<sub>2</sub>NH 存在化、メタノール中、少過剰の IPrAP を室温で作用させたところ、ジアゾ化が定量的に進行した。<sup>t</sup>Pr<sub>2</sub>NH を 0.2 当量にしても、定量的にジアゾ化は進行した。次に、一般にジアゾ化剤として広く使われるトシルアジド、*p*-ABSA、イミダゾール-1-スルフォニルアジド、ADMP を用いて同様な条件で反応を行った。この場合、全くジアゾ化が進行しないか低収率であり、IPrAP の高いジアゾ移動能を確認することができた。

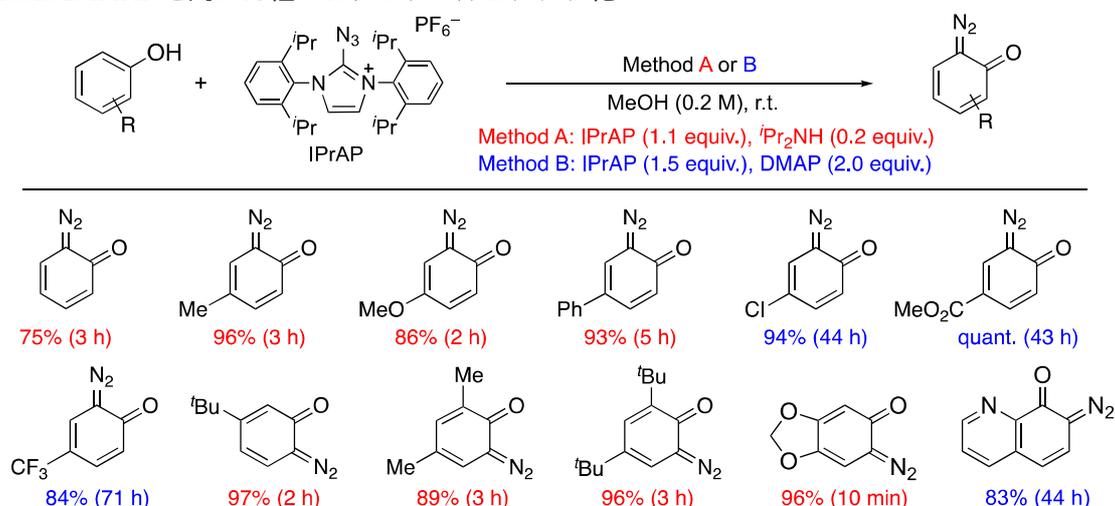
**Table 1.** IPrAP を用いたフェノールのジアゾ化



a) 0.2 equiv. of <sup>t</sup>Pr<sub>2</sub>NH was used.

IPrAP を用いたジアゾ化は、種々の単環のフェノールに対して進行した (Table 2)。求核性の高いフェノール類は反応性が高く、IPrAP と触媒量の <sup>t</sup>Pr<sub>2</sub>NH を用いてジアゾ化が進行した (Method A)。一方、電子求引性基が置換したフェノールに対しては上記条件では反応が遅く、塩基を 4-ジメチルアミノピリジン (DMAP) に変え、2 倍モル量用いることで進行した (Method B)。

**Table 2.** IPrAP を用いた種々のフェノールのジアゾ化



## (2) ジアゾキノンを用いた反応開発：

ジアゾキノンを用いる中性条件でのアセタールおよびオルトエステル合成法の開発

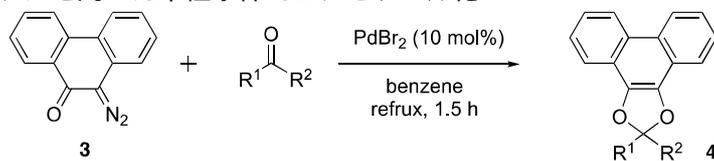
アセタールは一般的にカルボニル化合物の保護基として用いられており、カルボニル化合物を酸性条件でアルコールと脱水縮合反応させることにより合成されている。しかし、官能基や保護基の中には酸性条件に弱いものが存在し、それらが同一化合物中にあるカルボニル化合物のアセタール化は難しい。そこで、中性条件でのアセタール化反応の開発を目的として、ジアゾ化合物と遷移金属触媒を用いたアセタール化反応の開発に取り組んだ。

ジアゾ化合物としては、ジアゾフェナントレンキノン **3** を設定した。**3** は 9-フェナントロールにアジドイミダゾリニウム ADMC を作用させることにより合成できた。

カルボニル化合物に対して、ジアゾフェナントレンキノン **3** を用いたアセタール化の条件を検討したところ、PdBr<sub>2</sub> を金属触媒に使い、ベンゼン中、加熱環流させ反応を行うと、所望のアセタール化が進行することが分かった (Table 3)。種々のアルデヒドやケトンから良好な収率で目的とするフェナントレンアセタール **4** が得られた。特に、環状ケトンの場合は高収率でアセタールが得られることがわかった (Entry 7)。

カルボニル化合物としてエステルを用いて反応を行いオルトエステルの合成を目指して反応を行ったところ、10%ながら所望のオルトエステルを得ることができた。このとき触媒量の AgOTf を加えると、オルトエステルの収率がやや向上した。

Table 3. ジアゾキノンをを用いた中性条件でのアセタール化

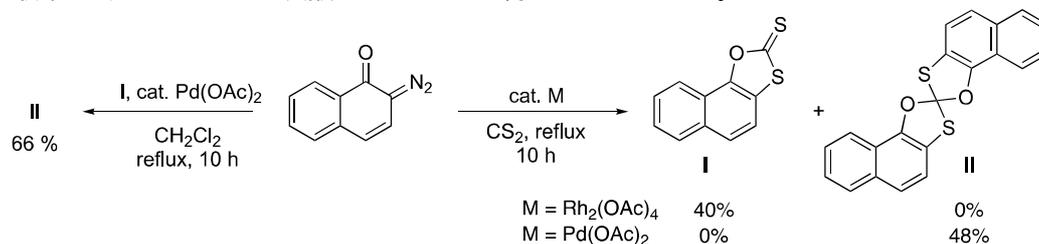


Run	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	Yield (%)	Run	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	Yield (%)
1	PhCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub>	H	72	5	PhCH=CH	CH <sub>3</sub>	75
2	Ph	H	60	6	Ph	CH <sub>3</sub>	60
3	2-Naphthyl	H	78	7	-(CH <sub>2</sub> ) <sub>4</sub> -		78
4	PhCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub>	CH <sub>3</sub>	68	8	PhCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub>	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	10 (16) <sup>a</sup>

a) 5 mol% AgOTf was added.

### ジアゾキノンをを用いるオルトジチオ炭酸エステル類の合成

オルトジチオ炭酸エステル類はモノマーや不斉配位子などへの利用が期待される化合物であるが合成例は少ない。本合成にジアゾナフトキノンをを用いた反応の利用を検討した。ジアゾナフトキノンを二硫化炭素中でRh<sub>2</sub>(OAc)<sub>4</sub>, もしくは, Pd(OAc)<sub>2</sub>を反応させると, それぞれジチオ炭酸エステル I, オルトジチオ炭酸エステル II がそれぞれ選択的に得られた。また, ジアゾナフトキノンをジチオ炭酸エステル I の 1,2-ジクロロエタン溶液に, Pd(OAc)<sub>2</sub>を加え反応させると, 収率よくオルトジチオ炭酸エステル II を得ることができた。



### (3) 開発した反応を用いる有用機能性物質の合成：キノサイクリン・イソキノサイクリン類の合成研究

キノサイクリン/イソキノサイクリン系抗生物質は, 1950年代に Streptomyces aureofaciens から単離されたアントラサイクリン系抗生物質の一種であり, キノサイクリン A, キノサイクリン B (コシノスタチン), イソキノサイクリン A が知られている (図 1)。キノサイクリン/イソキノサイクリン系抗生物質は7環式の母核 (ABCDEFG環) に糖が結合した構造で, その母核は, 3つのキラル中心 (C7, C9, C10) を持つテトラヒドロナフタセンキノンコア (ABCD環) に, あまり例のないピロロピロール (FG環) が N,O-アセタール介して連結した特徴的な構造を持つ。我々はこの特徴的な構造と生理活性に着目しこれらの化合物の合成を目指し, 第一段階としてアグリコン 5, 6の合成に取り組んだ。

Scheme 2 に, アグリコン 5, 6の合成計画を示す。本計画はジアゾキノンの反応を鍵とするものである。すなわち, アントラノール7にグアニジノジアゾニウム塩を用いてジアゾ化を行い

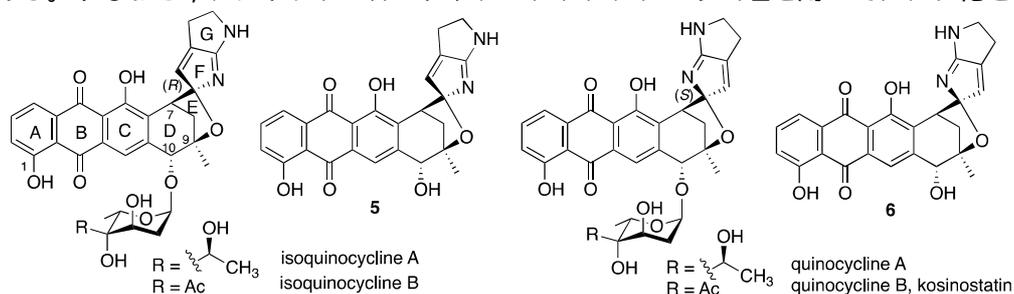
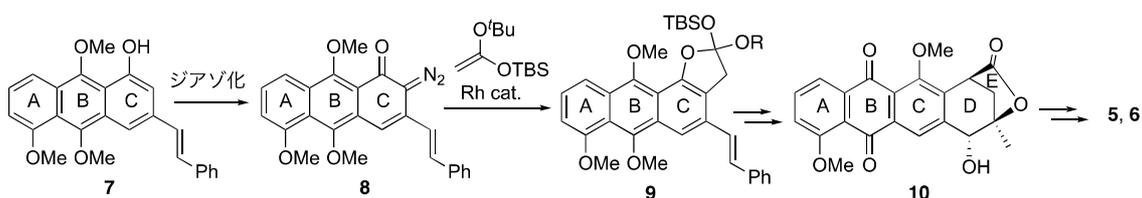


Figure 1. キノサイクリン/イソキノサイクリン系抗生物質

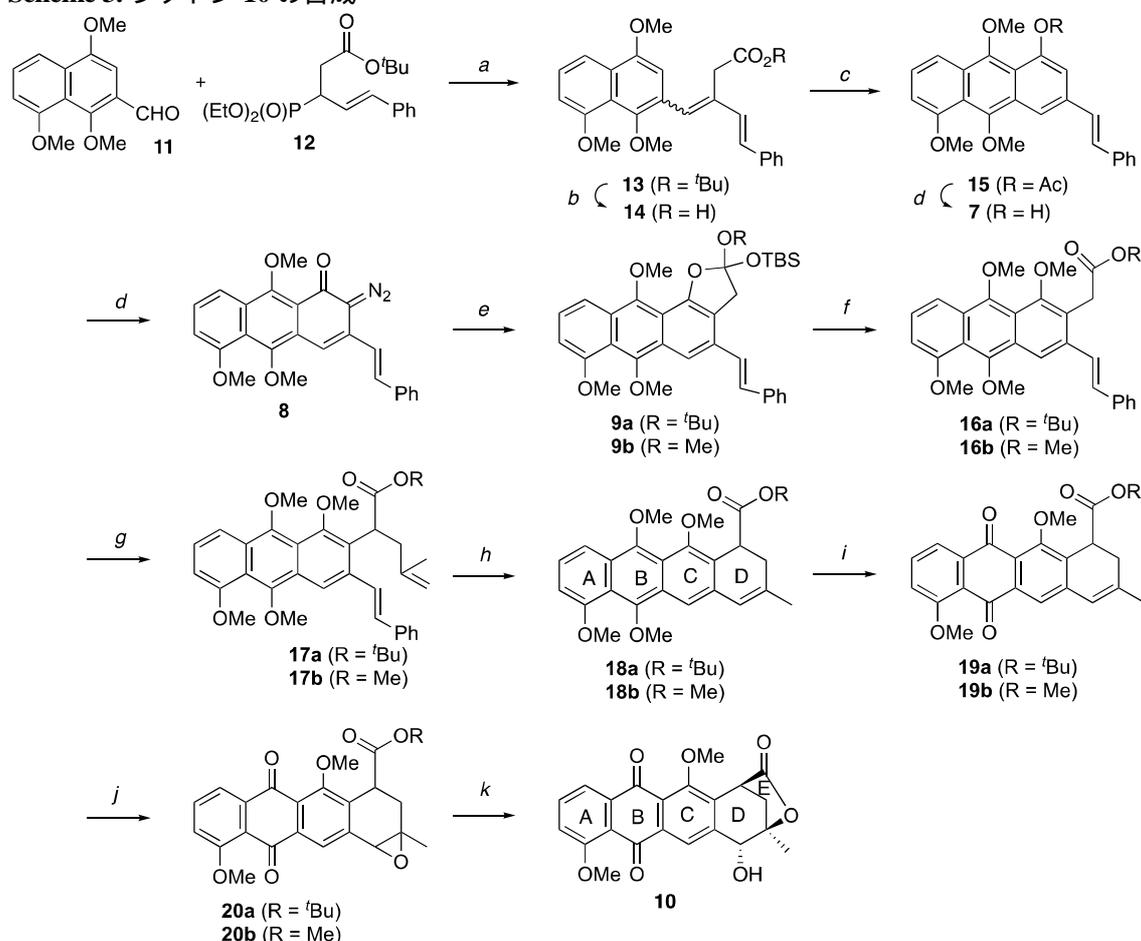


Scheme 2.アグリコン 5, 6の合成計画

ジアゾキノン **8** を合成し、続いて Rh 触媒とアルケンを用いた環化付加により環化体 **9** を合成する。**9** から ABCDE 環から成るラクトン **10** へと誘導し、最後に FG 環を導入してアグリコンを合成しようというものである。

Scheme 2 の合成計画に従い検討を行い、ラクトン **10** の合成に成功した (Scheme 3)。アルデヒド **11** を 1,5-ナフタレンジオールから 8 段階で合成し、これとリン酸エステル **12** を用いた Horner-Wittig 反応、続いてエステルの加水分解を行い、カルボン酸 **14** を合成した。次に **14** の分子内環化を行い、**15** を経てアントラノール **7** へと誘導した。アントラノール **7** にグアニジノジアゾニウム塩 ADMC を作用させると期待通りジアゾ化が進行し、ジアゾキノン **8** が得られた。Rh 触媒を用いたジアゾキノン **8** とケテンシリルアセタールとの環化は円滑に進行し、環状オルトエステル **9** を収率良く得た。続いて **9** にテトラブチルアンモニウムフルオリド ( ${}^n\text{Bu}_4\text{NF}$ ) を作用させシリル基を除去して開環した後、生じたフェノールをメチル化して **16** を合成した。エステル **16** にメタリル基を導入してジエン **17** へと誘導した後、オレフィンメタセシスを行い環化体 **18** を合成した。B 環を酸化してキノンへと誘導したのち、*m*-CPBA を作用させると D 環が選択的にエポキシ化された。エポキシド **20** に適切な酸を反応させるとラクトン化がおり、D 環全ての相対立体配置が構築されたラクトン **10** を合成することができた。ラクトン **10** は Koertらによるイソキノサイクリンの中間体であり、これをもって、イソキノサイクリンアグリコンの形式合成を行えたことになる。現在は、コシノスタチンアグリコン合成に向け検討を行っている。

### Scheme 3. ラクトン **10** の合成



a) NaH, THF, 0 °C, 17 h (74%, *E/Z* = ca. 4/1). b) formic acid.,  $\text{CH}_2\text{Cl}_2$ , 20 h (89%). c) NaOAc,  $\text{Ac}_2\text{O}$ , reflux, 1 h. (85%). d) KOH, cat.  ${}^n\text{Bu}_4\text{NBr}$ ,  $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ ,  $\text{H}_2\text{O}$ , 1,4-dioxane, 0 °C to rt, 12 h (95%). e) ADMC, cat. 15-crown-5  $\text{Et}_3\text{N}$ , THF,  $\text{CH}_3\text{CN}$ , -30 °C, 2.5 h (87%). f) For the synthesis of **9a**:  $\text{CH}_2=\text{C}(\text{OTBS})(\text{O}^t\text{Bu})$ , cat.  $\text{Rh}_2(\text{OAc})_4$ ,  $\text{C}_2\text{H}_4\text{Cl}_2$ , 70 °C, 2 h (79%). For the synthesis of **9b**:  $\text{CH}_2=\text{C}(\text{OTBS})(\text{OMe})$ , cat.  $\text{Rh}_2(\text{OAc})_4$ ,  $\text{CH}_2\text{Cl}_2$ , reflux, 15 min (85%). g)  ${}^n\text{Bu}_4\text{NF}$ , MeI, NaH,  $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ , THF, rt, (**16a**: 74%; **16b** 78%). h)  $\text{CH}_2=\text{C}(\text{CH}_3)\text{CH}_2\text{Br}$ , NaH, DMF [**17a**: 82% (rt, 3 h); **17b** 72%(30 °C, 1.5 h)]. i) cat. Grubbs 2nd cat., benzene, reflux [**18a**: 96% (12 h); **18b**: 93% (9 h)]. j)  $\text{Ce}(\text{NH}_4)_2(\text{NO}_3)_6$ ,  $\text{CH}_3\text{CN}$ ,  $\text{H}_2\text{O}$ , rt [**19a**: 81%; **19b** 88%]. k) *m*-CPBA,  $\text{NaHCO}_3$ ,  $\text{CH}_2\text{Cl}_2$ , rt, [**20a**: 77% (dr = ca. 1:1) (20 h); **20b** 73% (dr = ca. 1:1) (11 h)]. l) For **20a**:  $\text{CF}_3\text{CO}_2\text{H}$ ,  $\text{CH}_2\text{Cl}_2$ , rt, 24 h (79%). For **20b**: 3M  $\text{H}_2\text{SO}_4$ , acetone, rt, 16 h (57%).

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計12件（うち査読付論文 12件／うち国際共著 2件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Kitamura, M., Nishimura, T., Otsuka, K., Shimooka, H., Okauchi, T.	4. 巻 61
2. 論文標題 Rh(II)-catalyzed formal [3+3] cycloaddition of diazonaphthoquinones and propargyl alcohols: Synthesis of 2,3-dihydronaphtho-1,4-dioxin derivatives	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Tetrahedron Letters	6. 最初と最後の頁 art. no. 151853
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.tetlet.2020.151853	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 Kitamura, M., Fujimura, R., Nishimura, T., Takahashi, S., Shimooka, H., Okauchi, T.	4. 巻 2020
2. 論文標題 Kitamura, M., Fujimura, R., Nishimura, T., Takahashi, S., Shimooka, H., Okauchi, T. PdBr <sub>2</sub> -Catalyzed Acetal Formation of Carbonyl Compounds Using Diazophenanthrenequinone: Utility of 9,10-Phenanthrenedioxyacetal	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 European Journal of Organic Chemistry	6. 最初と最後の頁 5319-5322
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/ejoc.202000315	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 Okauchi, T., Urakawa, A., Tabuchi, N., Arai, M., Nakagawa, T., Ichimura, T., Shimooka, H., Kitamura, M.	4. 巻 40
2. 論文標題 Okauchi, T., Urakawa, A., Tabuchi, N., Arai, M., Nakagawa, T., Ichimura, T., Shimooka, H., Kitamura, M. Pyrrole Formation via Reactivity of 4-(Vinylketenimine)iron Complexes with Electron-Deficient Alkynes	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Organometallics	6. 最初と最後の頁 2929-2933
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.organomet.1c00321	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 Kitamura, M., Suetake, H., Hoshino, K., Higashijima, Y., Kisanuki, M., Yuasa, R., Yamaguchi, Y., Shimazu, T., Koga, N., Hamada, H., Miyori, N., Shimooka, H., Okauchi, T.	4. 巻 33
2. 論文標題 Formal Synthesis of Teadenols via Palladium-Catalyzed 6-endo Cyclization of an Epoxyphenol	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Synlett	6. 最初と最後の頁 1523-1526
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1055/a-1890-8287	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 Kitamura, M., Fukuzumi, N., Shinagawa, M., Araki, K., Shimizu, Y., Takahashi, S., Iwata, T., Shimooka, H., Okauchi, T.	4. 巻 125
2. 論文標題 Formal synthesis of isoquinocyclinone using ortho-alkoxycarbonylmethylation of anthranol via diazoquinone	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Tetrahedron Letters	6. 最初と最後の頁 art. no. 154618
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.tetlet.2023.154618	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 Kitamura, M., Ohtsuka, K., Eto, T., Tsuzaki, M., Wada, M., Shimooka, H., Okauchi, T.	4. 巻 88
2. 論文標題 Diazo-Transfer Reaction of Nonactivated Ketones with 2-Azido-1,3-bis(2,6-diisopropylphenyl)imidazolium Hexafluorophosphate (IPrAP)	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Organic Chemistry	6. 最初と最後の頁 15494-15500
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.joc.3c01743	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 Hammill, M.L., Tsubaki, K., Kitamura, M., Okauchi, T., Desaulniers, J.-P.	4. 巻 3
2. 論文標題 Synthesis of an Ortho-Functionalized Tetrafluorinated Azobenzene Phosphoramidite for Incorporation into a Tetrafluorinated Azobenzene-Containing siRNA for Photocontrolled Gene Silencing	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Current Protocols	6. 最初と最後の頁 art. no. e874
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/cpz1.874	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 該当する

1. 著者名 Kitamura, M., Fukuzumi, N., Shinagawa, M., Araki, K., Shimizu, Y., Takahashi, S., Iwata, T., Shimooka, H., Okauchi, T.	4. 巻 125
2. 論文標題 Formal synthesis of isoquinocyclinone using ortho-alkoxycarbonylmethylation of anthranol via diazoquinone	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Tetrahedron Letters	6. 最初と最後の頁 art. no. 154618
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.tetlet.2023.154618	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 Okauchi, T., Teratani, K., Nakagawa, T., Ichimura, T., Shimooka, H., Kitamura, M.	4. 巻 990
2. 論文標題 Conversion of 4-(Vinylketene)iron complexes to 4-(Vinylketenimine)iron complexes using titanium chloride and amines	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Organometallic Chemistry	6. 最初と最後の頁 art. no. 122672
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jorganchem.2023.122672	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 M. Kitamura, T. Eto, K. Konai, S. Takahashi, H. Shimooka, T. Okauchi	4. 巻 2022
2. 論文標題 Synthesis of Diazoquinones and Azidophenols via Diazo-Transfer Reaction of Phenols	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 European Journal of Organic Chemistry	6. 最初と最後の頁 e202200307
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/ejoc.202200307	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 M. L. Hammill, K. Tsubaki, L. Salim, A. J. Varley, I. Giorges, M. Kitamura, T. Okauchi, J. P. Desaulniers	4. 巻 13
2. 論文標題 SiRNAs with Neutral Phosphate Triester Hydrocarbon Tails Exhibit Carrier-Free Gene-Silencing Activity	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 ACS Medicinal Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 695-700
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsmchemlett.2c00027	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 該当する

1. 著者名 M. Kitamura, H. Suetake, K. Hoshino, Y. Higashijima, M. Kisanuki, R. Yuasa, Y. Yamaguchi, T. Shimazu, N. Koga, H. Hamada, N. Miyori, H. Shimooka,	4. 巻 33
2. 論文標題 Formal Synthesis of Teadenols via Palladium-Catalyzed 6-endo Cyclization of an Epoxyphenol	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Synlett	6. 最初と最後の頁 1523-1526
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1055/a-1890-8287	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10件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 渡邊愛梨, 平河隆二, 下岡弘和, 岡内辰夫, 北村充
2. 発表標題 スマネンコロネンハイブリッド化合物の合成研究
3. 学会等名 化学関連支部合同九州大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 石橋千里, 番野滉大, 下岡弘和, 岡内辰夫, 北村充
2. 発表標題 金属触媒を用いるジアゾナフトキノンとグリシドールの環化反応
3. 学会等名 化学関連支部合同九州大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Chisato Ishibashi, Koudai Banno, Sinya Sasaki, Hirokazu Shimooka, Tatsuo Okauchi, Mitsuru Kitamura
2. 発表標題 Synthesis of dihydro-1,4-naphthodioxines by the metal-catalyzed reaction of diazonaphthoquinones and glycidol
3. 学会等名 2022 Ontario Tech U KIT Mini Symposium in Chemistry
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 石橋千里, 番野滉大, 佐々木信弥, 下岡弘和, 岡内辰夫, 北村充
2. 発表標題 金属触媒を用いたジアゾナフトキノンとグリシドールの環化によるベンゾジオキサンの合成
3. 学会等名 日本化学会 第103春季年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 渡邊 愛梨、平河 隆二、下岡 弘和、岡内 辰夫、北村 充
2. 発表標題 ヒドロキシコロネン類の合成研究
3. 学会等名 日本化学会 第103春季年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 佐々木 信弥、番野 滉大、下岡 弘和、岡内 辰夫、北村 充
2. 発表標題 ジアゾナフトキノンを用いたスピロオルソチオ炭酸エステルの合成法の開発
3. 学会等名 日本化学会第102春期年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 番野滉大、藤村 涼、佐々木信弥、下岡弘和、岡内辰夫、北村 充
2. 発表標題 ジアゾキノンを用いる中性条件でのアセタールおよび オルトエステル合成法の開発
3. 学会等名 第31回記念万有福岡シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 柴田 匠翔、岩田 拓実、下岡 弘和、岡内 辰夫、北村 充
2. 発表標題 コシノスタチンアグリコンの合成研究：CD環の不斉合成の検討
3. 学会等名 日本化学会第104春期年会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 門倉 祐介、島津 貴大、下岡 弘和、岡内 辰夫、北村 充
2. 発表標題 Teadenolの合成を目指したPd触媒を用いたビニルエポキシドのフェノールとの分子内環化反応の開発
3. 学会等名 日本化学会第104春期年会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 渡邊 愛梨、平河 隆二、下岡 弘和、岡内 辰夫、北村 充
2. 発表標題 ヒドロキシコロネン類の合成
3. 学会等名 第33回万有福岡シンポジウム
4. 発表年 2023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
---------------------------	-----------------------	----

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