

寺田 眞浩氏(東北大学大学院理学研究科・教授)

Masahiro Terada



(業績)「水素結合を戦略的相互作用とする有機分子触媒の創製」

Development of Organocatalysts Based on Formation of Hydrogen Bonds as Strategic Interaction

環境問題が深刻化するなか、現在の文明社会を持続するには、多様化する物質を、環境に負荷をかけずにいかに得るかが化学者に果された命題となっている。その実現には、効率、選択性を極限まで高め、廃棄物を極力抑えた高度な分子変換反応の開発が不可欠である。開発の鍵は、高活性と高度な立体制御能とを併せ持ち、かつ、再利用が可能な耐久性を備えた分子触媒の設計にある。

寺田氏は、こうした分子触媒の設計開発にあたり、有機変換反応における最も古典的かつ汎用性の高い触媒であるブレンステッド酸ならびに塩基に着目し、これに不斉認識や分子認識などの基質認識能を付与した有機分子触媒を開発することで、従来の酸・塩基触媒反応に革新的なアプローチをもたらした。これらの開発では、水素結合を基質認識のみならず活性化の鍵相互作用とするという独自の発想から、斬新な触媒設計の指針を打ち出し、極めて高い触媒活性と高度な立体化学制御能を兼ね備えたキラルブレンステッド酸ならびに塩基触媒の開発に成功し、世界的に注目される研究成果を挙げた。以下にその業績の概略を紹介する。

1. キラルブレンステッド酸触媒の設計開発

ブレンステッド酸は有機合成において最も汎用される触媒であり、これまで触媒として意識されることすらなく多用されてきた。これまでのブレンステッド酸の開発研究の多くは、高い触媒活性の獲得を目的として、プロトン化された反応基質と共役塩基との相互作用をいかに希薄にするかに主眼点が置かれてきた。同氏は、これら酸触媒の従来研究の方向性とは全く異なる、水素結合を積極的に活用した酸触媒の開発を目指し、キラルブレンステッド酸触媒による有機変換反応の高度立体化学制御を世界に先駆けて成功した。同氏は、他の有機酸には見られない構造的な特徴と、化学的な性質を備えたリン酸に着目し、これに軸不斉を有するピナフル骨格を組み合わせた不斉リン酸触媒を設計開発することで、高度立体化学制御を実現した。この水素結合を鍵とする不斉リン酸触媒の設計開発によって、“ブレンステッド酸触媒では高度立体化学制御は不可能”とされてきたこれまでの常識を覆し、新たな研究分野を確立した。不斉リン酸触媒は、現在、世界各国の研究室において活発に研究されており、続々と新たな研究成果が報告されている。炭

素-炭素結合生成反応を中心に、環化付加反応ならびに多成分連結反応や反応の連続化などのバリエーションに加え、炭素-ヘテロ元素結合生成反応、さらには酸化/還元といった官能基変換反応など多彩な触媒反応系が実現されている。一方で、同氏は、不斉リン酸触媒と金属錯体触媒とを組み合わせ、これらの触媒系をリレー式に結び付けた新たな分子変換反応を開発し、有機分子触媒の枠組みを超えた触媒反応系の開拓にも成果を挙げている。

2. キラルブレンステッド塩基触媒の設計開発

同氏はキラルブレンステッド酸触媒の開発を通じ、その設計コンセプト、“水素結合を介した相互作用”をキラルブレンステッド塩基触媒の設計開発へと展開した。これまで、一般の有機塩基では通常の有機化合物を活性化するには塩基性が不十分なこと、また、立体化学制御を可能とする触媒の設計が困難であったことが要因となり、有機塩基触媒の開発は大きく立ち遅れていた。同氏は、有機強塩基であり、かつ多重水素結合が可能なグアニジンに着目した。これまで、キラルグアニジン塩基触媒は数例報告されていたものの、触媒活性や選択性は必ずしも十分とはいえなかった。その理由がグアニジンの平面構造に基づく高い対称性にあると考え、独自の分子設計のもと、軸不斉ピナフル骨格を組み込むことで多重水素結合能を備えた新規軸不斉グアニジン塩基触媒の開発に成功した。開発した触媒は、従来の有機塩基触媒には見られない高い触媒活性と立体化学制御能を備えており、炭素-炭素結合生成反応ならびに炭素-窒素などのヘテロ元素との結合生成反応の優れた不斉触媒として機能し、従来の有機分子触媒において問題となっていた「多くの触媒量」、「長い反応時間」を大幅に改善した。

このように、寺田氏は、水素結合を介した相互作用を武器とするという、従来にない斬新な発想のもと、高度な立体化学制御能を具備したキラルブレンステッド酸触媒の開発に世界に先駆けて成功した。さらに、酸触媒における分子設計戦略を、グアニジンを主官能基とするキラルブレンステッド塩基触媒の開発へと展開し、そのいずれにおいても卓抜した成果を挙げ、これら一連の研究は国際的に高い評価を受けている。よって、同氏の研究業績は有機合成化学協会第一三共・創薬有機化学賞に値すると認め、ここに選定した次第である。