

東北大学名誉教授 山本 嘉則 氏

Yoshinori Yamamoto



〔業績〕「有機金属—ルイス酸複合反応系および新奇金属触媒を用いる合成」

有機合成に有機金属化合物及びルイス酸を利用する研究は 1970 年代に黎明期を迎えたが、その時期に山本嘉則氏は有機金属—ルイス酸複合反応系を創出し、合成的に有用な立体及び位置選択的反応を開拓した。その反応系を応用し、比較的容易に複雑な巨大海産天然物の全合成を達成した。また、同時期に萌芽期にあったパラジウムを始めとする遷移金属触媒反応は、比較的簡単な有機化合物が研究の対象となっていたが、医薬品応用等が可能な複雑な構造を持つヘテロ環化合物に展開可能な新反応を見出し、ヘテロ環化学の発展に貢献した。さらに、新奇な不均一触媒である、ナノポーラス金属触媒を有機合成に応用しグリーンな分子変換反応を達成することに先鞭をつけた。

1. 有機金属—ルイス酸複合反応系を用いる新規分子変換反応の開拓

有機銅反応剤が三フッ化ホウ素などのルイス酸存在下に、 α 、 β —不飽和カルボニル化合物に極めて高効率に 1, 4—付加反応を起こすことを見出した。塩基である有機銅が、酸であるルイス酸のもとで、通常の酸・塩基反応を起こさずに、ルイス酸が反応基質を活性化し、有機銅の 1, 4—付加反応を飛躍的に促進するという新しい反応型式を開拓した。さらにクロチルスズ化合物とアルデヒドとの縮合反応でルイス酸が存在すると、非環状遷移状態を経て、シン—ホモアリルアルコールが得られることを見出した。従来のアリル有機金属とアルデヒドとの縮合反応は環状遷移状態を経ると云われていたが、ルイス酸存在下では全く別の遷移状態を経ることを明らかにし、立体選択的合成反応の分野に新しい考え方を導入した。これらの新手法を用いて、 β —ラクタム、スタチン、プラシノライド、 α —エクダインなど数多くの有用な生物活性化合物の立体選択的合成を達成した。さらに、ホウ素やアルミニウムよりなる通常のルイス酸は、孤立電子対 (σ 電子) に親和性を持つことが知られているが、金・銀・白金などの貴金属よりなるルイス酸は三重結合などの π 電子に対して強い親和性を持つことに着目し、 π 電子親和性ルイス酸 (金、銀、白金のルイス酸) 特有の新しい分子変換反応を開拓した。

2. 巨大分子ポリ環状エーテル海洋天然物の全合成

有機金属—ルイス酸複合反応系および π 電子親和性ルイス酸を用いていくつかの有用な生物活性天然物の合成を達成したが、それらの中で特筆すべきは巨大海洋天然物ガンビエロールとプレベトキシシン B の全合成である。タヒチのガンビエール島の近海でとれる魚には神経毒を持つものが存在し、住民はこの魚を食べることにより嘔吐や強い下痢を起こし、時には死に至ることもあるが、その毒物の原因物質は分子長が 3 ナノメートルにもおよぶ巨大ポリ環状エーテルのガンビエロールである。ルイス酸を用いるアリル化反応を基本的手法として、

ガンビエロールの全合成を達成した。また、赤潮の原因毒として巨大ポリ環状エーテルのプレベトキシシン B が知られているが、やはりルイス酸存在下のアリル化反応を用いて、プレベトキシシン B の全合成を達成した。

3. パラジウム等の遷移金属触媒を用いる分子変換反応の開発とヘテロ環合成への展開

π —アリルパラジウム錯体の π —アリル基は求電子性を有し、求核反応剤と反応することが知られている (辻—Trost 反応) が、ビス— π —アリルパラジウム種の π —アリル基は逆の反応性を持つ (求核性を持ち、求電子反応剤と反応) ことを見出した。また、不斉 π —アリル基を持つビス— π —アリル錯体を開発し、イミンの触媒的不斉アリル化反応を達成した。パラジウム触媒を用いるインドール合成、インデン合成、ベンゾフランなどのヘテロ環合成の新手法開発に貢献した。エンインやジインなどの不飽和炭化水素をパラジウム触媒下に反応させると、位置選択的に二量化し、多置換芳香族化合物が一挙に構築できることを見出した。また、アルキンへの分子内触媒的不斉ヒドロアミノ化およびヒドロアルコキシ化を開拓し、生物活性有用ヘテロ環化合物の合成を達成し、分子性金属触媒 (均一系触媒) の合成化学への展開に貢献した。

4. ナノポーラス金属触媒の開拓

グリーンプロセス達成のため、持続性可能な金属触媒の開拓は時代の要請である。ナノポーラス構造をもつ金属触媒を脱合金法によって創製し、世界に先駆けて有機合成反応に応用し、この新触媒が堅牢で持続使用可能でありしかも触媒活性が高いことを見出し、触媒的分子合成の分野に大きく貢献した。

これらの業績に対して、日本化学会進歩賞 (1976)、日本化学会賞 (1996)、フンボルト研究賞 (2002)、紫綬褒章 (2006)、Arthur C. Cope Scholar Award (2007)、Centenary Prize (2009)、瑞宝中授章 (2015) を受けた。学会活動では日本化学会理事および副会長、ヘテロ環化学国際学会会長などを歴任した。また、2007 年に始まった、文部科学省の世界トップレベル研究拠点プログラム (WPI—プログラム) において、東北大学の材料科学研究拠点 (WPI—AIMR) を立ち上げ、WPI—AIMR 機構長、副学長として、学術振興に尽力した。

よって山本嘉則氏は、有機合成化学特別賞に相応しいと認め、ここに選定した次第である。

〔略歴〕

昭和 45 年 大阪大学基礎工学研究科博士課程修了
現在 東北大学名誉教授