

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 13 日現在

機関番号：13301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2012～2015

課題番号：24350022

研究課題名(和文) 1,3-双極子を活用する複素環合成の革新

研究課題名(英文) Innovation in Synthesis of Heterocycles Utilizing 1,3-Dipoles

研究代表者

宇梶 裕 (Yutaka, Ukaji)

金沢大学・物質化学系・教授

研究者番号：80193853

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,200,000円

研究成果の概要(和文)：医薬、農薬においては複素環は重要な役割を果たすことから、新規医薬、農薬など高付加価値物質の創生には複素環合成の新手法開拓が必須である。本研究では、窒素、酸素などのヘテロ原子を有してアトムエコノミカルな複素環合成に有効な1,3-双極子を活用し、「協奏的1,3-双極子付加環化の力量化」としてアゾメチンイミンの不斉1,3-双極子付加環化反応、「段階的(=非協奏的)付加-環化を基盤とする集積反応系の確立」として、ニトロンへの不斉求核付加-環化反応、および「1,5-双極子のルネサンス」として、C,N-環状N'-アシルアゾメチンイミンの[5+1]環化反応など、3つの方向から複素環合成の革新を実現した。

研究成果の概要(英文)：The development of a practical and efficient method for construction of heterocycles is an essential part of programs to explore new medical and agrochemical agents. 1,3-Dipoles are important chemical species containing heteroatoms. We studied on innovative syntheses heterocycles utilizing 1,3-dipoles based on three strategies.

We designed a novel chiral reaction system possessing multi-metal centers utilizing tartaric acid ester as a chiral auxiliary. Based on this concept, we developed asymmetric 1,3-dipolar cycloadditions of azomethine imines to allylic alcohols. A strategy consisted of a stepwise addition to 1,3-dipoles, followed by cyclization was found to be an alternative and regiocontrolled pathway to synthesize of heterocycles. An asymmetric addition of acetylides to nitrones followed by cyclization was developed to give the corresponding optically active 4-isoxazolines. A novel [5+1] cycloaddition reaction of N'-acyl azomethine imines with isocyanides was also explored.

研究分野：有機合成化学

キーワード：1,3-双極子 複素環 協奏的付加環化 段階的付加-環化 共役拡張型1,3-双極子 1,5-双極子 光学活性

1. 研究開始当初の背景

20世紀以来の科学の発展により物質的に豊かな社会となったが、環境負荷等の問題が生じ、自然と調和した持続的発展には、新発想に基づく「ものづくり」法の確立が急務である。医薬、農薬等の高付加価値物質の合成は少資源日本が世界に誇れる数少ない生産分野であり、今後世界で生き残るためには他の追随を許さない独創性の追及が必要である。複素環はそれ自身生理活性を示すばかりでなく、医薬、農薬で重要な役割を果たす一方、有用な合成中間体でもあり、新規医薬、農薬など高付加価値物質の創生には革新的複素環合成手法の確立が必須である。

1,3-双極子は窒素、酸素等ヘテロ原子を有する化学種で、アトムエコノミカルな複素環合成に非常に有効であるが、その主な利用法は協奏的付加環化であった。しかし、同じ $[4\pi+2\pi]$ 型 Diels-Alder 反応に比べて立体制御を含めて開発が遅れている上、協奏的付加環化のみでは限界があり、斬新なアイデアに基づく 1,3-双極子を活用した複素環合成法の確立が強く望まれている。

2. 研究の目的

本研究では、「協奏的 1,3-双極子付加環化の力量化」に加え、「段階的 (=非協奏的) 付加環化を基盤とする集積反応系の確立」、および「1,5-双極子 (=共役拡張型 1,3-双極子) のルネサンス」という新コンセプトを提案し、この3基軸により 1,3-双極子を活用する複素環合成の革新を行うことを目的とした。

3. 研究の方法

次の1)～5)について検討した。

1) 協奏的 1,3-双極子付加環化反応の力量化

1位酸素含有型以外の 1,3-双極子での立体制御を実現する。既に、炭素-窒素-窒素型のアゾメチンイミンにおいて、複核キラル反応場において高い不斉誘起発現を確認している。本研究では以下の問題点の解決を行い、協奏的反応の力量化を図る。

- アゾメチンイミンに対応可能な求 1,3-双極子剤の範囲拡大。
- アゾメチンイミンの窒素上の保護基除去についての問題解決。

2) 段階的 (=非協奏的) 付加環化を基盤とする集積反応系の確立

協奏的 1,3-双極子付加環化反応では、金属への配位の足場の無い不飽和化合物との

反応の位置選択性が低い等の欠点がある。ここで、「段階的 (=非協奏的) 付加環化」を基盤とする新領域を開拓できれば、協奏的反応の対極として特長ある複素環合成を実現できる。今回、ニトロンへの亜鉛アセチリドの付加を第1段階とし、*N*-(プロパルギル)ヒドロキシルアミン→4-イソオキサゾリン→アシルアジリジンの、付加環化+骨格変換について、以下の点を検討した。

- ルイス酸等による各段階の効率化。
- アシルアジリジンからアゾメチンイリド発生法の確立と不斉記憶、不斉誘起の探索。

3) 「1,5-双極子 (=共役拡張型 1,3-双極子) のルネサンス」と“新”複素環合成

1,3-双極子への求核付加は、協奏的付加環化反応とは異なる複素環合成領域を切開く契機となりうる。アシルアゾメチンイミンへのイソシアニドの付加で、 $[5+1]$ 付加環化生成物が得られる大変興味深い事実を確認し、共役拡張型 1,3-双極子を 1,5-双極子として機能させることにより、新たな複素環合成領域を開拓できる。従来付加環化にほとんど利用されていない 1,5-双極子に着目し、以下を検討した。

- 各種アシルアゾメチンイミンとイソシアニドの 1,5-付加環化反応系の確立。
- 1,5-双極子として機能しうるアシル置換-1,3-双極子、ビニル置換-1,3-双極子との反応の検討。
- メチレンカルベンなどの新たな求 1,5-双極子剤の探索。

4) 1,2-および 1,4-双極性活性種への展開

上記1)～3)の基軸を 1,2-および、1,4-双極性活性種に適用し、多様な複素環合成を実現する。

5) 生理活性化合物探索と合成

得られた各種複素環化合物自身の生理活性発現について共同研究にて検討するとともに、各種生理活性物質合成に応用し、本手法が、生理活性複素環化合物供給に役立つことを立証する。

4. 研究成果

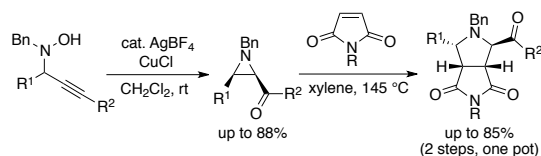
1) アリルアルコールとしてプロキラルな 1,4-ペンタジエン-3-オールを基質とし、アゾメチンイミンの不斉 1,3-双極子付加環化反応による不斉非対称化で複数の不斉炭素の一挙構築を試みた。酒石酸エステルを不斉源として活用する複核キラル反応場の中心金属としてはマグネシウムを選び、付加環化反応を行ったところ、酒石酸エステルを化学量論量用いることにより不斉非対称化が進行し、

対応する光学活性ピラゾリジンが高レジオ、ジアステレオ、エナンチオ選択的に得られることを見出した。

アリルアルコールとして 2-メチル-2-プロペン-1-オールを基質とし、アゾメチンイミンの不斉 1,3-双極子付加環化反応を試みたところ、酒石酸エステル由来の複核キラル反応場の中心金属としてはマグネシウムを選ぶことにより、4級不斉炭素を有する光学活性ピラゾリジンが高レジオ、ジアステレオ、エナンチオ選択的に得られることを見出した。



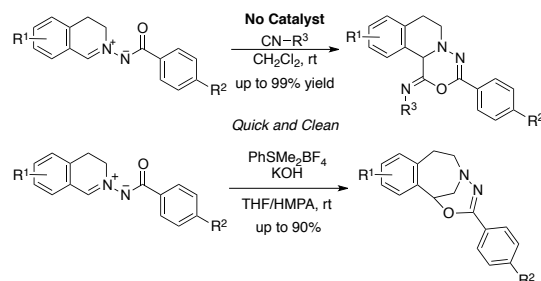
2) ニトロンへの亜鉛アセチリドの求核付加反応生成物である *N*-(プロパルギル)ヒドロキシルアミンを基盤とする環化反応を試みたところ、銀塩存在下で効率的な環化反応が進行し、対応する 4-イソオキサゾリンが高収率で得られた。一方、銀塩と銅塩の共存下で環化-骨格変換が一挙に進行し、2-アシルアジリジンが *cis* 選択的に得られ、さらに不飽和アルケンであるマレイミドを加えて加熱すると、アゾメチンイリドが発生して 1,3-双極子付加環化反応が進行し、今度に官能基化された 2,5-*trans*-ピロリジンをワンポットで得られることを見出した。



3) *C,N*-環状 *N'*-アシルアゾメチンイミンとイソシアニドとの Ugi 型の付加反応を試みたところ、[5+1] 環化反応が進行し、対応するイミノ-1,3,4-オキサジアジン-6-オンが得られることを見出した。これは、*C,N*-環状 *N'*-アシルアゾメチンイミンが 1,5-双極子として機能したことを意味し、1,3-双極子の新たな反応性を見出した反応として極めて画期的である。アジリジンジカルボン酸ジエステルから発生する *N'*-アシルアゾメチンイリドと芳香族イソシアニドとの分子内捕捉反応を試みたところ、[5+1] 環化反応ではなく、炭素側で捕捉された [3+1] 環化反応生成物が得られることを見出していたが、脂肪族イソシアニドとの反応では、予期に反して [3+1+1] 環化反応生成物が得られることを見出した。種々のアジリジンジカルボン酸エステルとの反応により対応する 5 員環複素環を合成することができた。

一方、*C,N*-環状 *N'*-アシルアゾメチンイミ

ンと C1 カルベン型反応剤として硫黄イリドとの反応を試みたところ、予期に反し環拡大反応が進行し、3-ベンズアゼピン誘導体も生成していることを確認した。硫黄イリドの種類および反応条件について詳細に検討したところ、立体障害の大きい硫黄イリドを用いること等により 3-ベンズアゼピン誘導体を選択的に高収率で得ることに成功した。



4) 1,4-双極性活性種である *N*-アシルイミンとイソシアニドとの反応において、ルイス酸を活性化剤として用いると [4+1] 環化反応生成物を修理強く得ることができた。

一方、プレノールと 1,2-双極性活性種ベンゾフェノンとの不斉 Paterno-Büchi 反応を酒石酸アミドマグネシウム塩存在下試みたところ、わずかであるが不斉誘起が起こることを見出した。

5) 2-メチル-2-プロペン-1-オールとピラゾリジノン部位を有するアゾメチンイミンの不斉 1,3-双極子付加環化反応によって得られる 4 級不斉炭素を有する光学活性ピラゾリジンを出発物質として、光学活性生理活性化合物の合成を試みた。従来このピラゾリジノン部位を精製物から除去することは困難であったが、ヒドラジン部位を還元的に切断し、アミン部分をウレタン型に保護したのち、水酸化物で処理するとそのピラゾリジノン部位が開環することを見出した。引き続き β -脱離により、保護基のない状態でのジアミノアルコールを得ることに成功した。この手法は、ピラゾリジノン部位を有するアゾメチンイミンからジアミノアルコール等の合成に有効である。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 30 件)

- ① T. Soeta, S. Takashita, Y. Sakata, Y. Ukaji, Ugi-type Multicomponent Reaction of Nitrile Imines, Isocyanides, and Isocyanates: Effective Synthesis of 1,2,4-Triazinedione Derivatives. (査読有) *Asian J. Org. Chem.* **2016**, *5*, accepted. DOI: 10.1002/ajoc.201600191
- ② T. Soeta, S. Takashita, Y. Sakata, Y. Ukaji, Ugi-type Multicomponent Reaction of Nitrile

- Imines, Isocyanides, and Isocyanates: Effective Synthesis of 1,2,4-Triazinedione Derivatives. (査読有) *Asian J. Org. Chem.* **2016**, *5*, accepted.
DOI: 10.1002/ajoc.201600191
- ③ Y. Watanabe, T. Sakai, H. Maeda, M. Segi, T. Soeta, Y. Ukaji. Magnesium-Alkoxide Directed Photoaddition of Tetrahydrofurans to γ , γ -Disubstituted Allylic Alcohols (査読有) *Heterocycles* **2016**, *93*, accepted.
DOI: 10.1002/asia.201501196
- ④ T. Nakano, K. Endo, Y. Ukaji, Ugi-type Silver-Catalyzed Allylation of Ketones and Intramolecular Cyclization via Carbene Intermediates from Cyclopropenes Under Ambient Conditions. (査読有) *Chem. –Asian J.* **2016**, *11*, 713–721.
DOI: 10.1002/asia.201501196
- ⑤ T. Soeta, S. Takashita, Y. Sakata, Y. Ukaji, Phosphinic Acid-Promoted Addition Reaction of Isocyanides to (Z)-Hydroximoyl Chlorides: Efficient Synthesis of α -(Hydroxyimino)-amides. (査読有) *Org. Biomol. Chem.* **2016**, *14*, 694–700.
DOI: 10.1039/C5OB02032H
- ⑥ F. Kurosawa, T. Nakano, T. Soeta, K. Endo, Y. Ukaji, (Z)-Selective Enol Triflation of α -Alkoxyacetaldehydes: Application to Synthesis of (Z)-Allylic Alcohols via Cross-Coupling Reaction and [1,2]-Wittig Rearrangement. (査読有) *J. Org. Chem.* **2015**, *80*, 5696–5703.
DOI: 10.1021/acs.joc.5b00647
- ⑦ T. Soeta, S. Matsuzaki, Y. Ukaji, A One-Pot *O*-Sulfinative Passerini/Oxidation Reaction: Synthesis of α -(Sulfonyloxy)amide Derivatives. (査読有) *J. Org. Chem.* **2015**, *80*, 3688–369.
DOI: 10.1021/acs.joc.5b00131
- ⑧ T. Nakano, K. Endo, Y. Ukaji, Copper(I)-Catalyzed Carbometalation of Unfunctionalized Cyclopropenes Using Organozinc and Grignard Reagents. (査読有) *Synlett* **2015**, *26*, 671–675.
DOI: 10.1055/s-0034-1379959
- ⑨ Y. Ukaji, T. Soeta, 1,3-双極子を活用する複素環合成の新展開. (査読有) 有機合成化学協会誌 **2015**, *73*, 65–75.
DOI: org/10.5059/yukigoseikyokaishi.73.65
- ⑩ T. Soeta, T. Ohgai, T. Sakai, S. Fujinami, Y. Ukaji, Ring Enlargement Reaction of *C,N*-Cyclic-*N'*-Acyl Azomethine Imines with Sulfonium Ylide: An Efficient Synthesis of 3-Benzazepine Derivatives. (査読有) *Org. Lett.* **2014**, *16*, 4854–4857.
DOI: 10.1021/ol502347n
- ⑪ T. Soeta, T. Ishizaka, Y. Tabatake, Y. Ukaji, Chiral NHC Ligands Bearing a Pyridine Moiety for the Copper-Catalyzed Alkylation of *N*-Sulfonylimines with Dialkylzinc Reagents. (査読有) *Chem. –Eur. J.* **2014**, *20*, 16773–16778.
DOI: 10.1002/chem.201404241
- ⑫ T. Soeta, Y. Miyamoto, S. Fujinami, Y. Ukaji, The Lewis Acid-Catalyzed [3+1+1] Cycloaddition of Azomethine Ylides with Isocyanides. (査読有) *Tetrahedron* **2014**, *70*, 6623–6629.
DOI: 10.1016/j.tet.2014.06.118
- ⑬ Y. Yonezawa, T. Furuya, T. Aratani, S. Fujinami, K. Inomata, Y. Ukaji, Desymmetrization of *meso*-Methylene-cyclopropanes by a Palladium-Catalyzed Asymmetric Ring-Opening Bis(alkoxy-carbonylation) Reaction. (査読有) *Tetrahedron: Asymmetry* **2014**, *25*, 936–943.
DOI: 10.1016/j.tetasy.2014.05.007
- ⑭ T. Soeta, K. Tamura, Y. Ukaji, [4+1] Cycloaddition of *N*-Acyl Imine Derivatives with Isocyanides: Efficient Synthesis of 5-Aminooxazoles and 5-Aminothiazoles. (査読有) *Tetrahedron* **2014**, *70*, 3005–3010.
DOI: org/10.1016/j.tet.2014.03.016
- ⑮ T. Nakano, K. Endo, Y. Ukaji, Catalytic Tandem C–C Bond Formation/Cleavage of Cyclopropene for Allylzincation of Aldehydes or Aldimine Using Organozinc Reagents. (査読有) *Org. Lett.* **2014**, *16*, 1418–1421.
DOI: org/10.1021/ol500208r
- ⑯ T. Soeta, S. Matsuzaki, Y. Ukaji, A One-Pot *O*-Phosphinative Passerini/Pudovik Reaction: Efficient Synthesis of Highly Functionalized α -(Phosphinyloxy)amide Derivatives. (査読有) *Chem. –Eur. J.* **2014**, *20*, 5007–5012.
DOI: org/10.1021/ol500208r
- ⑰ T. Soeta, Y. Ukaji, Catalytic Carboxylic Acid-Free Novel Isocyanide Based Reactions. (査読有) *Chem. Rec.* **2014**, *14*, 101–116.
DOI: 10.1002/tcr.201300021
- ⑱ M. Yoshida, N. Sassa, T. Kato, S. Fujinami, T. Soeta, K. Inomata, Y. Ukaji, Desymmetrization of 1,4-Pentadien-3-ol by the Asymmetric 1,3-Dipolar Cycloaddition of Azomethine Imines. (査読有) *Chem. –Eur. J.* **2014**, *20*, 2058–2064.
DOI: 10.1002/chem.201302889
- ⑲ T. Nakano, T. Soeta, K. Endo, K. Inomata, Y. Ukaji, Stereoselective Synthesis of (2*Z*,4*E*)-2,4-Pentadien-1-ols via Sequential 1,4-Elimination Reaction and [1,2]-Wittig Rearrangement Starting from (*E*)-4-Alkoxy-2-butenyl Benzoates. (査読有) *J. Org. Chem.* **2013**, *78*, 12654–12661.
DOI: 10.1021/jo402272r
- ⑳ K. Endo, T. Nakano, S. Fujinami, Y. Ukaji, Chemoselective Carbozincation of Cyclopropene for C–C Bond Formation and Cleavage Sequence in Single Operation. (査読有) *Eur. J. Org. Chem.* **2013**, 6514–6518.
DOI: 10.1002/ejoc.201301026

- ⑳ K. Endo, F. Kurosawa, Y. Ukaji, Dramatic Silver(I) Oxide-Promoted Chemoselective Cross-Coupling Reaction of (Diborylmethyl)trimethylsilane. (査読有) *Chem. Lett.* **2013**, *42*, 1363–1365. DOI: 10.1246/cl.130643
- ㉑ T. Sakai, T. Soeta, K. Endo, S. Fujinami, Y. Ukaji, Magnesium-Tartramide Complex Mediated Asymmetric Strecker-Type Reaction of Nitrones Using Cyanohydrin. (査読有) *Org. Lett.* **2013**, *15*, 2422–2425. DOI: 10.1021/ol400898p
- ㉒ T. Soeta, Y. Tabatake, S. Fujinami, Y. Ukaji, *N*-Heterocyclic Carbene Catalyzed Oxidative Coupling of Aldehydes with Carbodiimides under Aerobic Conditions: Efficient Synthesis of *N*-Acylureas. (査読有) *Org. Lett.* **2013**, *15*, 2088–2091. DOI: 10.1021/ol400672c
- ㉓ Y. Miyamoto, N. Wada, T. Soeta, S. Fujinami, K. Inomata, Y. Ukaji, One-pot Stereoselective Syntheses of 2-Acylaziridines and 2-Acylpyrrolidines from *N*-(Propargylic)hydroxylamines. (査読有) *Chem. –Asian J.* **2013**, *8*, 824–831. DOI: 10.1002/asia.201201180
- ㉔ T. Soeta, S. Fujinami, Y. Ukaji, The Chlorosilane-Promoted Addition Reaction of Isocyanides to 3,4-Dihydroisoquinoline *N*-Oxides. (査読有) *J. Org. Chem.* **2012**, *77*, 9878–9883. DOI: 10.1021/jo301791m
- ㉕ T. Soeta, Y. Tabatake, Y. Ukaji, An Asymmetric Intramolecular Stetter Reaction Catalyzed by a Chiral Triazolium Precatalyst Bearing a Pyridine Moiety. (査読有) *Tetrahedron* **2012**, *68*, 10188–10193. DOI: 10.1016/j.tet.2012.09.095
- ㉖ T. Aratani, K. Tahara, S. Takeuchi, S. Kitamura, M. Murai, S. Fujinami, K. Inomata, Y. Ukaji, Asymmetric Bis(alkoxycarbonylation) Reaction of Cyclic Olefins Catalyzed by Palladium in the Presence of Copper(I) Triflate, *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **2012**, *85*, 1225–1232. (査読有) DOI: 10.1246/bcsj.20120125
- ㉗ T. Soeta, K. Tamura, Y. Ukaji, [5+1] Cycloaddition of *C,N*-Cyclic *N'*-Acyl Azomethine Imines with Isocyanides. (査読有) *Org. Lett.* **2012**, *14*, 1226–1229. DOI: 10.1021/ol2034542
- ㉘ T. Sakai, T. Soeta, K. Inomata, Y. Ukaji, Strecker-Type Reaction of Nitrones Using Cyanohydrin. (査読有) *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **2012**, *85*, 231–235. DOI: 10.1246/bcsj.20110270
- ㉙ T. Soeta, Y. Tabatake, K. Inomata, Y. Ukaji, An Asymmetric Intramolecular Stetter Reaction Catalyzed by a Chiral Triazolium Precatalyst Bearing a Pyridine Moiety. (査読有) *Tetrahedron* **2012**, *68*, 894–899. DOI: org/10.1016/j.tet.2011.11.028
- [学会発表] (計 23 件)
- ① 高下 卓・添田貴宏・宇梶 裕, イソシアネートを活用した新規 Ugi 型反応の開発: 高効率の 1,2,4-トリアジノン誘導体の合成, 日本化学会第 95 春季年会, 2016 年 3 月 25 日 (京田辺)
- ② Tong Thi Minh Thu, T. Soeta, Y. Ukaji, Enantioselective 1,3-Dipolar Cycloaddition of Azomethine Imines Utilizing Tartaric Acid Ester as a Chiral Auxiliary, 日本化学会第 95 春季年会, 2016 年 3 月 25 日 (京田辺)
- ③ 渡邊康貴・坂井飛大・千木昌人・前多 肇・添田貴宏・宇梶 裕, アリルアルコールへのテトラヒドロフラン類の位置選択的光付加反応平成 27 年度北陸地区講演会と研究発表会, 2015 年 11 月 27 日 (金沢)
- ④ 高下 卓・添田貴宏・宇梶 裕, ホスフィン酸を活性化剤とした新規 Ugi 型反応の開発, 平成 27 年度北陸地区講演会と研究発表会, 2015 年 11 月 27 日 (金沢)
- ⑤ Tong Thi Minh Thu, Takahiro Soeta, Yutaka Ukaji, Enantioselective 1,3-Dipolar Cycloaddition of Azomethine Imines Utilizing Tartaric Acid Ester as a Chiral Auxiliary, 平成 27 年度北陸地区講演会と研究発表会, 2015 年 11 月 27 日 (金沢)
- ⑥ Tong Thi Minh Thu T. Soeta, Y. Ukaji, Enantioselective 1,3-Dipolar Cycloaddition of Azomethine Imines Utilizing Tartaric Acid Ester as a Chiral Auxiliary, The 13th International Kyoto Conference on New Aspect of Organic Chemistry (IKCOC13), 2015 年 11 月 11 日 (Kyoto)
- ⑦ 渡邊康貴・坂井飛大・千木昌人・前多 肇・添田貴宏・宇梶 裕, アリルアルコールへのテトラヒドロフラン類の位置選択的光付加反応, 有機合成化学北陸セミナー, 2015 年 10 月 2 日 (富山)
- ⑧ 渡邊 康貴・坂井 飛大・宇梶 裕, テトラヒドロフランのアリルアルコールへの光付加反応の開発, 日本化学会第 94 春季年会, 2015 年 03 月 27 日 (船橋)
- ⑨ Y. Ukaji, Unprecedented Synthesis of Heterocycles Utilizing 1,3-Dipoles, Vietnam Malaysia International Chemical Congress (VMICC), 2014, 11, 8 (Hanoi, Vietnam)
- ⑩ Y. Ukaji, New Aspects of 1,3-Dipoles for Heterocycles, IUPAC 9th International Conference on Novel Materials and Synthesis (NMS-IX) & 23rd International Symposium on Fine Chemistry and Functional Polymers (FCFP-XXIII), 2013, 10, 21 (Shanghai, China)
- ⑪ 田村 要・添田貴宏・宇梶 裕, 新規なイソシアニドの付加-捕捉手法を基盤とする複素環合成反応の開発, 有機合成化

- 学北陸セミナー, 2013年10月4日(金沢)
- ⑫ 吉田麻理・佐々直太郎・加藤智光・添田貴宏・猪股勝彦・宇梶 裕, 酒石酸誘導体を不斉源として活用するアゾメチンイミンの不斉1,3-双極子付加環化反応, 有機合成化学北陸セミナー, 2013年10月4日(金沢)
- ⑬ T. Sakai, T. Soeta, K. Endo, Y. Ukaji Magnesium-Tartramide Complex Mediated Asymmetric Strecker-Type Reaction of Nitrones Using Cyanohydrin, The 10th International Symposium on Carbanion Chemistry (ISCC-10), September 25, 2013 (Kyoto)
- ⑭ 宮本祥明・和田展広・添田貴宏・猪股勝彦・宇梶 裕, アシルアジリジンより発生するアゾメチンイリドの1,3-双極子付加環化反応, 有機合成化学セミナー, 2013年9月18日(倉敷)
- ⑮ Y. Ukaji, development of Novel Synthetic Methods for Heterocycles Utilizing 1,3-Dipoles, 2013年度第1回GSCセミナー: 2013年6月13日, (鳥取)
- ⑯ 坂井飛大・添田貴宏・遠藤恆平・宇梶 裕, 酒石酸アミド-マグネシウム錯体を不斉源とするニトロソとシアノヒドリンの不斉Strecker型反応, 日本化学会第93春季年会, 2013年3月24日(草津)
- ⑰ 吉田麻理・佐々直太郎・加藤智光・添田貴宏・猪股勝彦・宇梶 裕, 酒石酸エステルを不斉源として活用するアゾメチンイミンの不斉1,3-双極子付加環化反応, 日本化学会第93春季年会, 2013年3月23日(草津)
- ⑱ 宮本祥明・和田展広・添田貴宏・猪股勝彦・宇梶 裕, 2-アシルアジリジンより発生するアゾメチンイリドの1,3-双極子付加環化反応, 日本化学会第93春季年会, 2013年3月23日(草津)
- ⑲ N. Wada, Y. Miyamoto, T. Soeta, K. Inomata, Y. Ukaji, Selective One-Pot Preparations of Heterocycles Starting from *N*-(Propargylic)hydroxylamines, the 12th International Kyoto Conference on New Aspects of Organic Chemistry (IKCOC-12) 2012年11月14日(京都)
- ⑳ 添田貴宏・田村 要・宇梶 裕, *C,N*-環状 *N'*-アシルアゾメチンイミンとイソシアニドの[5+1]付加環化反応とその応用, 第42回複素環化学討論会, 2012年10月11日(京都)
- ㉑ 坂井飛大・添田貴宏・猪股勝彦・宇梶 裕, 金シアノヒドリンを活用するニトロソのStrecker型反応有機合成化学北陸セミナー, 2012年10月5日(富山)
- ㉒ 坂井飛大・添田貴宏・猪股勝彦・宇梶 裕, シアノヒドリンを活用するニトロソのStrecker型反応, 第29回有機合成化学セミナー, 2012年9月6日(静岡)
- ㉓ 添田貴宏・田村 要・宇梶 裕, *C,N*-環状

N'-アシルアゾメチンイミンとイソシアニドの[5+1]付加環化反応とその応用, 日本プロセス化学会2012サマーシンポジウム, 2012年7月19日(京都)

[図書] (計5件)

- ① 「金属水素化物による還元法」山田 徹, 宇梶 裕, 『有機合成実験法ハンドブック』**2015**, (丸善) 印刷中
- ② T. Soeta, Y. Ukaji, “Methods and Applications of Cycloaddition Reactions in Organic Syntheses.” ed. by N. Nishiwaki, John Wiley & Sons, Inc., **2014**, Chap. 11.
- ③ Y. Ukaji, Addition reaction / Cycloaddition involving oxidation (no C-C bond formed). “Comprehensive Chirality.” ed. by H. Yamamoto, E. Carreira, Elsevier, Oxford, **2012**, 6.22.
- ④ Y. Ukaji T. Soeta, Acetogenin (polyripiopionate) Derived Auxiliaries/Tartaric Acid, “Comprehensive Chirality.” ed. by H. Yamamoto, E. Carreira, Elsevier, Oxford, **2012**, 4.06.
- ⑤ 宇梶 裕, 「1,3-双極子付加環化反応」, 「Reformatsky 反応」, 「Simmons-Smith 反応」, 『トップドラックから学ぶ創薬化学』(東京化学同人) **2012**,

[その他]

ホームページ等

http://ridb.kanazawa-u.ac.jp/public/detail.php?id=3069&page=1&org2_cd=340400

6. 研究組織

(1) 研究代表者

宇梶 裕 (UKAJI YUTAKA)
金沢大学・物質化学系・教授
研究者番号: 8019353

(2) 連携研究者

添田 貴宏 (SOETA TAKAHIRO)
金沢大学・物質化学系・准教授
研究者番号: 10506819