Osaka University Knowledge Archive

Title	STUDIES OF C-H BOND CARBONYLATION AND DECARBONYLATIVE CLEAVAGE OF C-C BONDS CATALYZED BY RUTHENIUM COMPLEXES
Author(s)	家, 裕隆
Citation	大阪大学, 2000, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.11501/3169352
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

Osaka University

【8】

氏　　名	家　裕　隆（いえ　ゆ　たか）
博士の専攻分野の名称	博　士（工　学）
学　位　記　番　号	第　15389　号
学位授与年月日	平成12年3月24日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 工学研究科分子化学専攻
学　位　論　文　名	STUDIES OF C-H BOND CARBONYLATION AND DECARBONYLATIVE CLEAVAGE OF C-C BONDS CATALYZED BY RUTHENIUM COMPLEXES （ルテニウム触媒による炭素－水素結合のカルボニル化および炭素－炭素結合の脱カルボニル化的切断反応に関する研究）
論　文　審　査　委　員	（主査） 教　授　村井　眞二 （副査） 教　授　野村　正勝　　教　授　井上　佳久　　教　授　池田　　功 教　授　馬場　章夫　　教　授　神戸　宣明　　教　授　黒澤　英夫 教　授　松林　玄悦　　教　授　真嶋　哲朗　　教　授　坂田　祥光 教　授　田中　　稔

論文内容の要旨

本論文は、ルテニウム触媒による、ベンゼン環炭素－水素結合のカルボニル化反応、およびアルキルフェニルケトンの脱カルボニル的炭素－炭素結合の切断に関する研究のまとめであり、緒言、本論三章、および総括からなっている。

緒言では、本研究目的と意義とその背景について述べ、とくに、遷移金属錯体による炭素－水素結合の切断、および、炭素－炭素結合の切断を含む触媒反応に関するこれまでの研究例を示している。さらに本研究の概略についても示している。

第一章では、ルテニウム触媒による2－ピリジルベンゼン類のベンゼン環の炭素－水素結合の直接カルボニル化について述べている。この反応は、ベンゼン環の炭素－水素結合で直接カルボニル化が効率よく進行した最初の例である。本反応では、ピリジン環窒素原子の配位を利用して、ベンゼン環オルト位で位置選択的にアシル化が進行することを示している。

第二章では、ルテニウム触媒による2－フェニルオキサゾリン類のベンゼン環の炭素－水素結合の直接カルボニル化反応について述べている。この反応では、オキサゾリン環を配向基とすることでもベンゼン環炭素－水素結合のカルボニル化が効率的に進行すること、また、様々な官能基が本反応条件下で安定であることから合成化学的に大きな展開が期待されることを示している。

第三章では、ルテニウム触媒存在下、アルキルフェニルケトンの脱カルボニル化による炭素－炭素結合の切断反応について述べている。この反応では窒素原子のルテニウムへの配位が鍵となり、ベンゼン環オルト位のケトンの炭素－炭素結合が選択的に切断されている。

本研究の結果、窒素原子による分子内配位を利用することにより、ルテニウム錯体を触媒としたベンゼン環炭素－水素結合の直接カルボニル化、および、アルキルフェニルケトンの炭素－炭素結合の切断を含む脱カルボニル化反応がいずれも触媒的に進行することを見いだしている。これらの知見は、有機合成化学、および、均一系触媒化学の分野に貢献するものと期待される。

論文審査の結果の要旨

本論文は、遷移金属錯体を触媒とする、通常不活性な炭素－水素、および、炭素－炭素結合の切断を素過程に含む新しい触媒反応の開発と展開に関するものである。主な成果を要約すると次の通りである。

(1) ルテニウムカルボニルを触媒とする、2－ピリジルベンゼン類と一酸化炭素とオレフィンとの反応について述べ、ベンゼン環オルト位の炭素－水素結合の切断を含む新しい型のカルボニル化反応が進行することを示している。

(2) (1)で述べた触媒反応に関して、基質として、2－フェニルオキサゾリン類にも適用可能であることを明らかにしている。

(3) ルテニウムカルボニルを触媒として、ベンゼン環オルト位にオキサゾリン環を有するアルキルフェニルケトンを基質として反応させると、ケトンの炭素－炭素結合の切断を含む脱カルボニル化反応が進行することを明らかにしている。

以上のように、本論文は遷移金属錯体を触媒とする、通常不活性な炭素－水素、炭素－炭素結合の切断を含む反応について述べたものである。これらの成果は、有機合成反応の一つの手法として有用であるものと考えられ、広く有機合成化学や均一系触媒化学の分野に対して貢献するところが大きい。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。