

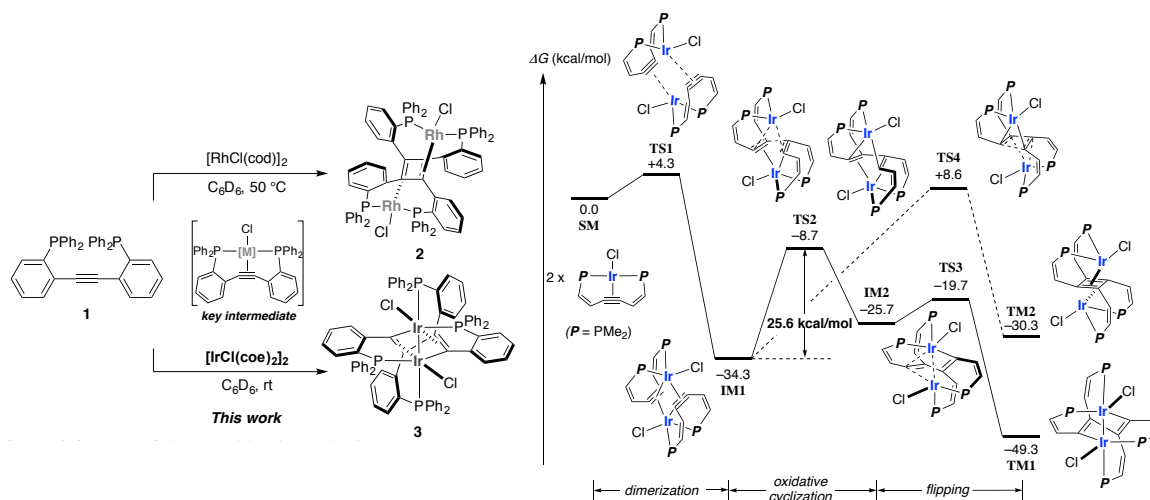
有機活性種を駆使した新規反応開発と機能性物質の合成
Development of Novel Transition-Metal Catalyzed Transformation

京都大学大学院工学研究科 物質エネルギー化学専攻 岡本 和紘

研究成果概要

本研究では、京都大学化学研究所スーパーコンピュータシステムを利用し、我々が最近見出した特異な二核構造を有するロジウムあるいはイリジウム錯体の形成機構について DFT 計算を行った。

多核錯体にはその構造中にある複数の金属中心の協働的作用によって、単核錯体にはない反応性が期待できる。一方、その合成手法の多くは既存の骨格を基に二核錯体を合成するテンプレート合成に限られており、新たな合成手法の開発が期待されている。我々は骨格内にアルキンを含むビスホスフィン配位子 **1** の後周期遷移金属との錯形成反応とその構造変化について研究しており、ロジウムあるいはイリジウムとの錯形成反応において、特異な骨格を有する二核錯体 **2, 3** が生成することを見出している。このように配位子内に反応点としてアルキンを導入することで、単核錯体を前駆体として、新たな炭素-炭素結合と新たな配位構造および金属-金属結合を同時に構築する手法を確立し、既存の方法では困難な複核構造の構築を達成している。本研究では、これらの錯形成挙動について、用いる金属種によって得られる錯体が異なる理由を調査した。DFT 計算の結果から、ロジウム、イリジウムいずれの場合もアルキンが配位した単核錯体の二量化を経て生成しており、二つの金属種の違いは、二量体からの反応性の違いに起因することを見出している。



今後の研究計画

以上の結果をまとめ、学術誌への投稿準備を進めているため次年度初頭には投稿できる見通しである。