

論文審査の結果の要旨

中谷 祐介

申請者氏名

天然には有用な活性を持つ化合物が数多く存在しており、有機合成化学者にとって非常に興味深い標的物質となっている。しかし、生物活性天然物は天然からは微量にしか得ることができないものが多く、その生物活性研究の発展には有機合成化学による大量供給が必須である。本論文では、未だ全合成の達成されていない、害虫制御活性を有する生物活性天然有機化合物の合成研究に関して論じたものであり、二部より構成されている。

第一部では、ネッタイシマカの幼虫に対して殺虫活性を有するピペリジンアルカロイドの合成研究を行っている。ネッタイシマカはデング熱を媒介することが知られており、デング熱は特效薬が存在しないため、防除のためには媒介するネッタイシマカの駆除が非常に重要である。そこで光学活性体のピペリジンアルカロイドの全合成達成と、未決定である天然物の絶対立体配置の決定を目的として研究を行った。D-アラニンを出発原料として、イミンに対する水素添加により6位の立体化学の構築に成功しており、続く側鎖の導入を経ることで、光学活性体のピペリジンアルカロイドの全合成を達成している。また、合成品と天然物との比旋光度の比較により、天然物の絶対立体配置を **2R,3R,6R** であると決定している。この結果、効率的で類縁体合成に応用可能な合成方法を確立すると共に、未決定であった天然物の絶対立体配置を決定するに至った。

第二部ではジャガイモシストセンチュウに対して孵化促進活性を有する **Solanoeclepin A** の合成研究を行っている。**Solanoeclepin A** はジャガイモの水耕栽培液中より単離された化合物で、ジャガイモの害虫であるジャガイモシストセンチュウに対して孵化促進活性を有することが報告されており、新たな生態学的農薬として期待される化合物である。**Solanoeclepin A** は、そのユニークな構造から合成化学的にも大きな関心がもたれているが、その複雑な構造のために未だ全合成は達成されていない。そこで **Solanoeclepin A** の効率的な全合成を目的として研究を行い、主に、合成を進める上で最も問題となるトリシクロデカン骨格の構築に関して、合成研究を行った。

光学活性な **Hajos-Wiechert** ケトンを出発原料として、**Wittig** 転位反応により望む立体を構築している。その後、 α -ジアゾケトンを用いた分子内 **Michael** 付加反応と、**Wolff** 転位反応により、立体的歪みの大きな光学活性体のトリシクロ[5.2.1.0^{1,6}]デカン骨格を、効率的に構築することに成功している。

本合成方法を用いることで、Solanoeclepin A の右側ユニットを、他の競合グループと比較しても、より効率的に合成できると期待でき、全合成に向けた基礎を築いた。

以上本論文は、「害虫制御活性を有する生物活性天然有機化合物の合成研究」を目的として、光学活性ピペリジナルカロイドの全合成および天然物の絶対立体配置の決定と、Solanoeclepin A の効率的な合成に向けたトリシクロデカン骨格の構築に関する研究をまとめたものであり、学術上ならびに応用上貢献するところが少なくない。よって審査員一同は本論文が博士(農学)の学位論文として価値あるものと認めた。