

**FCC 鈴木章先生記念未来創造ラボ
研究成 果 報 告 書**

(ふりがな) 氏 名	(いとう はじめ) 伊藤 肇 (印)	所 属	職 名
		応用化学部門	教授
研 究 課 題 名	分野横断エレメント工学産学国際連携研究		
研 究 期 間	平成 26 年 11 月 1 日 ~ 平成 31 年 4 月 30 日		
研 究 財 源	特別経費「フォトニック錯体工学拠点の形成」、科学研究費補助金（挑戦的萌芽）		
使 用 ス ペ ー ス	C および D		

研究組織

氏名 (年齢)	所属	現在の専門	役割分担
伊藤肇 (51)	応用化学部門	有機合成化学	研究統括・連携促進
長谷川靖哉 (51)	応用化学部門	錯体化学	発光材料・ナノ材料開発
大利徹 (58)	応用化学部門	応用生物化学	生体関連物質研究計画立案
小笠原泰志 (42)	応用化学部門	応用生物化学	生体関連物質の合成と利用
島田敏宏 (54)	応用化学部門	固体反応化学	有機・無機ハイブリッド材料設計
柳瀬隆 (34)	応用化学部門	固体反応化学	有機・無機ハイブリッド材料合成

活動計画の概要（研究の背景、意義・価値・構想理由・問題の所在等）

近年の科学研究における大きな問題は、分野の細分化と研究機器の高度化による専門化が進むことにより、分野間交流が妨げられ、イノベーションにつながる新発見が得られにくいという点が挙げられる。本研究では、分野の異なる4つの研究チームが、FCC 鈴木章先生記念未来創造ラボという自由度が高くかつ施設の充実したスペースを媒介に、分野を横断した連携研究と、将来的には産学並びに国際連携を視野に入れた研究を行うものであった。有機合成化学と機能性材料を研究の主題とする伊藤、希土類錯体を用いた実用的な新規発光性材料の開発を主な研究主題とする長谷川、および生合成工学による新しい医薬品の開発や新規代謝経路の解明に関する研究を行う大利・小笠原、そしてナノ構造制御により新材料を開発する研究を実施する島田・柳瀬の4つのサブグループが連携して、新しいイノベーションを目指した共同研究を行った。その別紙論文リストに示すような多大な研究成果に加えて、新しい共同研究に基づく外部資金の獲得を通じて、FCC と工学研究院だけでなく、北海道大学全体に多大な貢献をもたらした（下記）。

- ▶ 研究グループの共著及び単独論文数：82（総被引用回数1992回・Google Scholar による）
- ▶ 本ラボの共同研究が契機となり獲得した主な共同研究プロジェクト：

【新学術領域研究・ソフトクリスタル：高秩序で柔軟な応答系の学理と光機能】

「伊藤（班長）・長谷川（評価班）・2017年から2022年まで研究費総額10億1千万円」

【JSPS世界トップレベル研究拠点プログラム WPI-IReDD】

「伊藤（副拠点長）・長谷川（PI）・2018年から2028年まで研究費総額約70億円」

【JST CREST・レドックスメカノケミストリーによる固体有機合成化学】

「伊藤（代表）・研究費総額1億5千万円」

【北海道大学ロバスト農林水産工学国際連携研究教育拠点】（長谷川）

研究活動成果の概要（研究の進捗・研究目的の達成度、問題点等について）

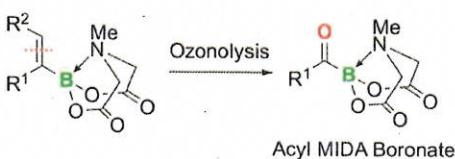
FCC 鈴木章記念未来創造ラボにおいて「分野横断エレメント工学産学国際連携研究」という研究課題名で2014年11月より研究をスタートした。上記研究課題に則り、我々は共同研究を展開し、それぞれの専門領域の境界において研究論文を93報報告した（研究業績欄を参照）。

代表的な成果として、伊藤・大利・小笠原らを中心に「アミノ酸型アシルホウ素化合物の合成法の開発」に成功した。アシルホウ素化合物は化学ライゲーションやタンパク質の化学修飾において有用な反応剤であるが、アミノ酸型のアシルホウ素化合物の合成法は確立されていなかった。ホウ素化学を専門とする伊藤らは、チューリッヒ工科大学のBodeらとともに国際共同研究を行い、アルケニルホウ素化合物のオゾン酸化によって対応するアシルホウ素化合物が得られることを見出した。この方法は温和な条件で進行するため、アミノ酸型アシルホウ素化合物の合成においても有効であった。さらにこの反応剤の有用性を示すため、ペプチドや酵素化学を専門としている大利・小笠原らとともに、オリゴペプチド合成への応用を行った。この研究成果は、化学分野の国際的トップジャーナルのひとつである *Angewandte Chemie* 誌に掲載された（J. Taguchi, T. Ikeda, R. Takahashi, I. Sasaki, Y. Ogasawara, T. Dairi, N. Kato, Y. Yamamoto, J. W. Bode, H. Ito, *Angew. Chem. Int. Ed.* 2017, 56, 13847–13851）

他の代表的な成果として、伊藤・長谷川らが中心となった「メカノケミストリーを用いた固体クロスカップリング反応」の開発が挙げられる（K. Kubota, T. Seo, K. Koide, Y. Hasegawa, H. Ito, *Nature Commun.* 2019, 10, 111.）。伊藤らは、ボールミルという粉碎機を用いたパラジウム触媒による固体メカノケミカルクロスカップリング反応が、1,5-シクロオクタジエンなどのアルケンの添加により劇的に加速されることを見出した。長谷川らが中心となって透過型電子顕微鏡を用いて解析を行った結果、アルケンを添加することでパラジウム触媒の凝集が抑制され、反応効率が劇的に向上していることがわかった。本反応は幅広い基質に適用することができ、特に有機溶媒に溶けにくいポルフィリンなどの基質においても効率良く反応が進行することが判明した。

またいくつかの研究論文が特に重要度の高い研究成果であると評価され、ジャーナルカバーアートに採択された（右下図）。この研究が鍵となり、【JST CREST・レドックスメカノケミストリーによる固体有機合成化学・伊藤（代表）・総額1億5千万円】が採択された。

■ 最近の代表的な成果1： アシルホウ素化合物の新合成法開発



Angew. Chem. Int. Ed. 2017, 56, 13847.



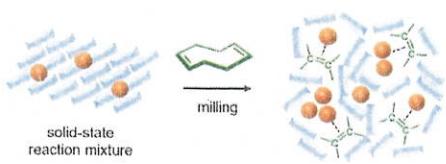
Chem. Eur. J. 2016, 22, 1968.



Chem. Commun. 2016, 52, 5916. *Chem. Commun.* 2016, 52, 8083.



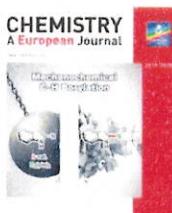
■ 最近の代表的な成果2： 固体クロスカップリング反応の開発



Nature Commun. 2019, 10, 111.



Chem. Commun. 2017, 53, 6700.



Chem. Eur. J. 2019, 25, 4654. *Angew. Chem. Int. Ed.* 2019, 58, 7299.



また更に別の代表的な研究成果として、伊藤・長谷川・関らによる「ソフトクリスタル関連研究」が挙げられる。この共同研究チームは、外部刺激に対してその発光性が敏感に変化する金属錯体について、本ラボのスペースや設備を活用して研究を行い、「分子ドミノ型単結晶－単結晶相転移材料」「発光性メカノクロミズム」「トライボ発光材料」の開発を精力的に行い、非常に多くの共同研究を発表した(Hirai, Y.; Nakanishi, T.; Kitagawa, Y.; Fushimi, K.; Seki, T.; Ito, H.; Hasegawa, Y., *Angew. Chem. Int. Ed.* 2016, 55, 12059-12062, Seki, T.; Sakurada, K.; Muromoto, M.; Ito, H., *Chem. Sci.* 2015, 6, 1491-1497)。これらの新材料は、本来硬い性質をもつ結晶であるものの、分子間で働く、異方的でかつ比較的弱い相互作用の集積がその形成の鍵になっている。この分子間相互作用は、複数の集積パターンを保つ場合があるが、これらが外部刺激によって変化し、かつそれらが発光特性などの鍵になっている場合、外部刺激応答性をもつ「ソフトクリスタル」が生じる。伊藤と長谷川らは、この本ラボにおいて、この現象の端緒を見出したが、北海道大学理学部の加藤昌子教授らと合流することにより、2017年からスタートした、【新学術領域研究・ソフトクリスタル：高秩序で柔軟な応答系の学理と光機能・総額10億1千万円】の採択へつながった。本研究領域は国際的にも高く評価されており、FCCの共同研究が結実した一つの成功例と言える。

また、伊藤・長谷川らは、計算科学を活用した有機合成反応設計、材料設計についても共同研究を進め、特に理学研究院の前田・武次らと共同研究論文を発表した(Uematsu, R.; Yamamoto, E.; Maeda, S.; Ito, H.; Taketsugu, T., *J. Am. Chem. Soc.* 2015, 137 (12), 4090-4099)。それらの実績に基づいて、2018年からは、【JSPS世界トップレベル研究拠点プログラム WPI-IICReDD 伊藤（副拠点長）・長谷川（PI）・総額10億1千万円】が採択された。この採択には、本ラボを中心として展開された5年に及び分野横断型の共同研究で培われた人的交流の下地の存在が非常に大きく、これなしでは到底実現できなかつた。

また、長谷川らが中心となって、2018年度から北海道大学ロバスト農林水産工学国際連携研究教育拠点（以下ロバスト拠点）を展開している。本センターで開発された光波長変換フィルムを用いて農作物育成試験を行っており、北海道大学が推進するロバスト拠点の発展に大きく貢献している。さらに、テレビ放映や講演会（アグリフェア）などで光波長変換フィルムを紹介し、企業連携によるフィルムの工業化検討も現在行っている。

研究活動が当該研究センターに寄与・貢献した点など

本研究期間において、本研究センターのスペース並びに共同研究設備をフルに活用したことにより、センターの研究に関して飛躍的な進展が見られている。特に有機・材料・生物化学分野において、過去5年間の研究成果は非常にインパクトがあり、本センターの知名度を全国的、国際的に高めることができた。また、本ラボでの活動を通じて、学士・修士課程のみならず、合計16名の博士課程学生を輩出できたことも、教育面における大きな成果であるといえる。

また、五年間の共同研究は、本ラボを中心としてさらに大きく拡大し、海外との共同研究（スイス連邦工科大学）、学内共同研究（理学研究院）へ、学内・学外プロジェクト（WPI、ロバスト拠点、新学術領域研究）へと大きく発展した。また、当初目的とした、オープンな研究者の往来による、新しいイノベーションを目指した研究拠点の形成に成功したといえる。外部資金獲得にも成功しており、北海道大学のネームバリューを大きく向上させたにとどまらず、財政的な貢献も非常に大きい（総額80億円超の外部資金獲得に関与）といえる。

○本研究における研究業績

研究代表者・ 分担者氏名	論文、著書、工業所有権等、招待講演など
伊藤 肇	<ol style="list-style-type: none"> 1. Pang, Y.; Ishiyama, T.; Kubota, K.; Ito, H., Iridium(I)-Catalyzed C-H Borylation in Air by Using Mechanochemistry. <i>Chem. Eur. J.</i> 2019, <i>25</i> (18), 4654-4659. (被引用回数 : 8) 2. Kubota, K.; Takahashi, R.; Ito, H., Mechanochemistry allows carrying out sensitive organometallic reactions in air: glove-box-and-Schlenk-line-free synthesis of oxidative addition complexes from aryl halides and palladium(0). <i>Chem. Sci.</i> 2019, <i>10</i> (22), 5837-5842. (被引用回数 : 7) 3. Kubota, K.; Seo, T.; Koide, K.; Hasegawa, Y.; Ito, H., Olefin-accelerated solid-state C-N cross-coupling reactions using mechanochemistry. <i>Nature Commun.</i> 2019, <i>10</i> (1), 111. (被引用回数 : 16) 4. Isono, T.; Kawakami, N.; Watanabe, K.; Yoshida, K.; Otsuka, I.; Mamiya, H.; Ito, H.; Yamamoto, T.; Tajima, K.; Borsali, R.; Satoh, T., Microphase separation of carbohydrate-based star-block copolymers with sub-10 nm periodicity. <i>Polymer Chemistry</i> 2019, <i>10</i> (9), 1119-1129. (被引用回数 : 7) 5. Aono, S.; Seki, T.; Ito, H.; Sakaki, S., Dependence of Absorption and Emission Spectra on Polymorphs of Gold(I) Isocyanide Complexes: Theoretical Study with QM/MM Approach. <i>J. Phys. Chem. C</i> 2019, <i>123</i> (8), 4773-4794. (被引用回数 : 5) 6. Seki, T.; Kobayashi, K.; Mashimo, T.; Ito, H., A gold isocyanide complex with a pendant carboxy group: orthogonal molecular arrangements and hypsochromically shifted luminescent mechanochromism. <i>Chem. Commun.</i> 2018, <i>54</i> (79), 11136-11139. (被引用回数 : 9) 7. Seki, T.; Ida, K.; Ito, H., A meta-diisocyanide benzene-based aryl gold isocyanide complex exhibiting multiple solid-state molecular arrangements and luminescent mechanochromism. <i>Mat. Chem. Front.</i> 2018, <i>2</i> (6), 1195-1200. (被引用回数 : 10) 8. Pang, Y.; Kojima, R.; Ito, H., Copper(i)-catalysed stereoselective debromoborylation of aliphatic 1,1-dibromo-1-alkenes with bis(pinacolato)diboron. <i>Org. Biomol. Chem.</i> 2018. (被引用回数 : 2) 9. Ozawa, Y.; Iwamoto, H.; Ito, H., Copper(i)-catalysed regio- and diastereoselective intramolecular alkylboration of terminal allenes via allylcopper(i) isomerization. <i>Chem. Commun.</i> 2018. (被引用回数 : 12) 10. Nakayama, N.; Obata, S.; Hori, Y.; Goto, H.; Seki, T.; Ito, H., Soft Crystal Force Field for Reproducing the Crystal Structures of Aryl Gold Isocyanide Complexes. <i>J. Comput. Chem. Jpn.</i> 2018, <i>17</i> (3), 155-157. (被引用回数 : 1) 11. Kojima, R.; Akiyama, S.; Ito, H., A Copper(I)-Catalyzed Enantioselective γ-Boryl Substitution of Trifluoromethyl-Substituted Alkenes: Synthesis of Enantioenriched γ,γ-gem-Difluoroallylboronates. <i>Angew. Chem. Int. Ed.</i> 2018, <i>57</i> (24), 7196--7199. (被引用回数 : 0) 12. Jin, M.; Sumitani, T.; Sato, H.; Seki, T.; Ito, H., Mechanical-Stimulation-Triggered and Solvent-Vapor-Induced Reverse Single-Crystal-to-Single-Crystal Phase Transitions with Alterations of the Luminescence Color. <i>J. Am. Chem. Soc.</i> 2018, <i>140</i> (8), 2875-2879. (被引用回数 : 54) 13. Iwamoto, H.; Imamoto, T.; Ito, H., Computational design of high-performance ligand for enantioselective Markovnikov hydroboration of aliphatic terminal alkenes. <i>Nature Commun.</i> 2018. (被引用回数 : 17) 14. Hasegawa, Y.; Miura, Y.; Kitagawa, Y.; Wada, S.; Nakanishi, T.; Fushimi, K.; Seki, T.; Ito, H.; Iwasa, T.; Taketsugu, T.; Gon, M.; Tanaka, K.; Chujo, Y.; Hattori, S.; Karasawa, M.; Ishii, K., Spiral Eu(iii) coordination polymers with circularly polarized luminescence. <i>Chem. Commun.</i> 2018, <i>54</i> (76), 10695-10697. (被引用回数 : 9) 15. Yamamoto, E.; Ukigai, S.; Ito, H., Formal Nucleophilic Silyl Substitution of Aryl Halides with Silyllithium Reagents via Halogenophilic Attack of Silyl Nucleophiles. <i>Synlett</i> 2017, <i>28</i> (18), 2460-2464. (被引用回数 : 6) 16. Yamamoto, E.; Shishido, R.; Seki, T.; Ito, H., Tris(trimethylsilyl)silylboronate Esters: Novel Bulky, Air- and Moisture-Stable Silylboronate Ester Reagents for Boryl Substitution and Silaboration Reactions. <i>Organometallics</i> 2017, <i>36</i> (16), 3019-3022. (被引用回数 : 12) 17. Yamamoto, E.; Maeda, S.; Taketsugu, T.; Ito, H., Transition-Metal-Free Boryl Substitution Using Silylboranes and Alkoxy Bases. <i>Synlett</i> 2017, <i>28</i> (11), 1258-1267. (被引用回数 : 6)

18. Takenouchi, Y.; Kojima, R.; Momma, R.; Ito, H., Copper(I)-Catalyzed Enantioselective Boryl Substitution of Allyl Acylals: An Efficient Approach for Enantioenriched -Chiral -Acetoxyallylboronates. *Synlett* **2017**, 28 (2), 270-274. (被引用回数 : 5)
19. Takenouchi, Y.; Ito, H., Copper(I)-Catalyzed Boryl Substitution of Allyl Aminals: Selective Synthesis of Linear gamma-Aminoallylboronates. *Synthesis* **2017**, 49 (21), 4738-4744. (被引用回数 : 3)
20. Taguchi, J.; Ikeda, T.; Takahashi, R.; Sasaki, I.; Ogasawara, Y.; Dairi, T.; Kato, N.; Yamamoto, Y.; Bode, J. W.; Ito, H., Synthesis of Acylborons by Ozonolysis of Alkenylboronates: Preparation of an Enantioenriched Amino Acid Acylboronate. *Angew. Chem. Int. Ed.* **2017**, 56 (44), 13847-13851. (被引用回数 : 31)
21. Seki, T.; Tokodai, N.; Omagari, S.; Nakanishi, T.; Hasegawa, Y.; Iwasa, T.; Taketsugu, T.; Ito, H., Luminescent Mechanochromic 9-Anthryl Gold(I) Isocyanide Complex with an Emission Maximum at 900 nm after Mechanical Stimulation. *J. Am. Chem. Soc.* **2017**, 139 (19), 6514-6517. (被引用回数 : 79)
22. Seki, T.; Kobayashi, K.; Ito, H., Low-temperature-selective luminescent mechanochromism of a thiényl gold isocyanide complex. *Chem. Commun.* **2017**, 53 (50), 6700-6703. (被引用回数 : 17)
23. Seki, T.; Kashiyama, K.; Yagai, S.; Ito, H., Tuning the Lifetime of Transient Phases of Mechanochromic Gold Isocyanide Complexes through Functionalization of the Terminal Moieties of Flexible Side Chains. *Chem. Lett.* **2017**, 46 (9), 1415-1418. (被引用回数 : 11)
24. Kubota, K.; Osaki, S.; Jin, M.; Ito, H., Copper(I)-Catalyzed Enantioselective Nucleophilic Borylation of Aliphatic Ketones: Synthesis of Enantioenriched Chiral Tertiary alpha-Hydroxyboronates. *Angew. Chem. Int. Ed.* **2017**, 56 (23), 6646-6650. (被引用回数 : 0)
25. Kubota, K.; Iwamoto, H.; Ito, H., Formal nucleophilic borylation and borylative cyclization of organic halides. *Org. Biomol. Chem.* **2017**, 15 (2), 285-300. (被引用回数 : 50)
26. Kojima, R.; Kubota, K.; Ito, H., Stereodivergent hydrodefluorination of gem-difluoroalkenes: selective synthesis of (Z)- and (E)-monofluoroalkenes. *Chem. Commun.* **2017**, 53 (77), 10688-10691. (被引用回数 : 52)
27. Jin, M.; Seki, T.; Ito, H., Mechano-Responsive Luminescence via Crystal-to-Crystal Phase Transitions between Chiral and Non-Chiral Space Groups. *J. Am. Chem. Soc.* **2017**, 139 (22), 7452-7455. (被引用回数 : 54)
28. Jin, M.; Chung, T. S.; Seki, T.; Ito, H.; Garcia-Garibay, M. A., Phosphorescence Control Mediated by Molecular Rotation and Auophilic Interactions in Amphidynamic Crystals of 1,4-Bis[tri-(p-fluorophenyl)phosphane-gold(I)-ethynyl]benzene. *J. Am. Chem. Soc.* **2017**, 139 (49), 18115-18121. (被引用回数 : 39)
29. Iwamoto, H.; Ozawa, Y.; Kubota, K.; Ito, H., Copper(I)-Catalyzed Regio- and Stereoselective Intramolecular Alkylboration of Propargyl Ethers and Amines. *J. Org. Chem.* **2017**, 82 (19), 10563-10573. (被引用回数 : 12)
30. Iwamoto, H.; Akiyama, S.; Hayama, K.; Ito, H., Copper(I)-Catalyzed Stereo- and Chemoselective Borylative Radical Cyclization of Alkyl Halides Bearing an Alkene Moiety. *Org. Lett.* **2017**, 19 (10), 2614-2617. (被引用回数 : 31)
31. Ito, H.; Takenouchi, Y., Copper(I)-Catalyzed Boryl Substitution of Allyl Aminals: Selective Synthesis of Linear γ -Aminoallylboronates. *Synthesis* **2017**, 49 (21), 4738--4744. (被引用回数 : 3)
32. Hayama, K.; Kubota, K.; Iwamoto, H.; Ito, H., Copper(I)-catalyzed Diastereoselective Dearomatic Carboborylation of Indoles. *Chem. Lett.* **2017**, 46 (12), 1800-1802. (被引用回数 : 6)
33. Hasegawa, Y.; Tateno, S.; Yamamoto, M.; Nakanishi, T.; Kitagawa, Y.; Seki, T.; Ito, H.; Fushimi, K., Effective Photo- and Triboluminescent Europium(III) Coordination Polymers with Rigid Triangular Spacer Ligands. *Chem. Eur. J.* **2017**, 23 (11), 2666-2672. (被引用回数 : 16)
34. Cuenca, A., B.; Shishido, R.; Ito, H.; Fernandez, E., Transition-metal-free B-B and B-interelement reactions with organic molecules. *Chem. Soc. Rev.* **2017**, 46 (2), 415-430. (被引用回数 : 134)
35. Yamamoto, E.; Kojima, R.; Kubota, K.; Ito, H., Copper(I)-Catalyzed Diastereoselective Borylative Exo-Cyclization of Alkenyl Aryl Ketones. *Synlett* **2016**, 27 (2), 272-276 (被引用回数 : 13)
36. Yamamoto, E.; Izumi, K.; Shishido, R.; Seki, T.; Tokodai, N.; Ito, H., Direct Introduction

- of a Dimesitylboryl Group Using Base-Mediated Substitution of Aryl Halides with Silyldimesitylborane. *Chem. Eur. J.* **2016**, 22 (49), 17547-17551. (被引用回数 : 6)
37. Yagai, S.; Seki, T.; Aonuma, H.; Kawaguchi, K.; Karatsu, T.; Okura, T.; Sakon, A.; Uekusa, H.; Ito, H., Mechanochromic Luminescence Based on Crystal-to-Crystal Transformation Mediated by a Transient Amorphous State. *Chem. Mater.* **2016**, 28 (1), 234-241. (被引用回数 : 83)
 38. Seki, T.; Takamatsu, Y.; Ito, H., A Screening Approach for the Discovery of Mechanochromic Gold(I) Isocyanide Complexes with Crystal-to-Crystal Phase Transitions. *J. Am. Chem. Soc.* **2016**, 138 (19), 6252-6260. (被引用回数 : 125)
 39. Seki, T.; Sakurada, K.; Muromoto, M.; Seki, S.; Ito, H., Detailed Investigation of the Structural, Thermal, and Electronic Properties of Gold Isocyanide Complexes with Mechano-Triggered Single-Crystal-to-Single-Crystal Phase Transitions. *Chem. Eur. J.* **2016**, 22 (6), 1968-1978. (被引用回数 : 23)
 40. Seki, T.; Jin, M.; Ito, H., Introduction of a Biphenyl Moiety for a Solvent-Responsive Aryl Gold(I) Isocyanide Complex with Mechanical Reactivation. *Inorg. Chem.* **2016**, 55 (23), 12309-12320. (被引用回数 : 15)
 41. Seki, T.; Ito, H., Molecular-Level Understanding of Structural Changes of Organic Crystals Induced by Macroscopic Mechanical Stimulation. *Chem. Eur. J.* **2016**, 22 (13), 4322-4329. (被引用回数 : 43)
 42. Sasaki, I.; Taguchi, J.; Doi, H.; Ito, H.; Ishiyama, T., Iridium(I)-catalyzed C-H Borylation of alpha,beta-Unsaturated Esters with Bis(pinacolato)diboron. *Chem. Asian. J.* **2016**, 11 (9), 1400-1405. (被引用回数 : 19)
 43. Sasaki, I.; Ikeda, T.; Amou, T.; Taguchi, J.; Ito, H.; Ishiyama, T., Regioselective C-H Borylation of Heteroaromatic Aldimines with Iridium Complexes. *Synlett* **2016**, 27 (10), 1582-1586. (被引用回数 : 5)
 44. Sakurada, K.; Seki, T.; Ito, H., Mechanical path to a photogenerated structure: ball milling-induced phase transition of a gold(I) complex. *Crystengcomm* **2016**, 18 (38), 7217-7220. (被引用回数 : 7)
 45. Omagari, S.; Nakanishi, T.; Kitagawa, Y.; Seki, T.; Fushimi, K.; Ito, H.; Meijerink, A.; Hasegawa, Y., Critical Role of Energy Transfer Between Terbium Ions for Suppression of Back Energy Transfer in Nonanuclear Terbium Clusters. *Sci. Rep.* **2016**, 6. (被引用回数 : 24)
 46. Nakajima, A.; Nakanishi, T.; Kitagawa, Y.; Seki, T.; Ito, H.; Fushimi, K.; Hasegawa, Y., Hyper-stable organo-Eu(III) luminophore under high temperature for photo-industrial application. *Sci. Rep.* **2016**, 6. (被引用回数 : 19)
 47. Kubota, K.; Watanabe, Y.; Ito, H., Synthesis of Enantiomerically Enriched Chiral Tetrahydroquinolines via Sequential Dearomatization/Enantioselective Borylation Reactions. *Adv. Synth. Catal.* **2016**, 358 (15), 2379-2384. (被引用回数 : 31)
 48. Kubota, K.; Watanabe, Y.; Hayama, K.; Ito, H., Enantioselective Synthesis of Chiral Piperidines via the Stepwise Dearomatization/Borylation of Pyridines. *J. Am. Chem. Soc.* **2016**, 138 (13), 4338-4341. (被引用回数 : 79)
 49. Kubota, K.; Jin, M.; Ito, H., Computational Insight into the Enantioselective Nucleophilic Borylation of a Polarized C=O Double Bond Catalyzed by Diphosphine/Borylcopper(I) Complexes. *Organometallics* **2016**, 35 (10), 1376-1383. (被引用回数 : 14)
 50. Jin, M.; Seki, T.; Ito, H., Luminescent mechanochromism of a chiral complex: distinct crystal structures and color changes of racemic and homochiral gold(I) isocyanide complexes with a binaphthyl moiety. *Chem. Commun.* **2016**, 52 (52), 8083-8086. (被引用回数 :) (被引用回数 : 29)
 51. Iwamoto, H.; Kubota, K.; Ito, H., Highly selective Markovnikov hydroboration of alkyl-substituted terminal alkenes with a phosphine-copper(I) catalyst. *Chem. Commun.* **2016**, 52 (35), 5916-5919. (被引用回数 : 50)
 52. Hirai, Y.; Nakanishi, T.; Kitagawa, Y.; Fushimi, K.; Seki, T.; Ito, H.; Hasegawa, Y., Luminescent Europium(III) Coordination Zippers Linked with Thiophene-Based Bridges. *Angew. Chem. Int. Ed.* **2016**, 55 (39), 12059-12062. (被引用回数 : 33)
 53. Yanagisawa, K.; Nakanishi, T.; Kitagawa, Y.; Seki, T.; Akama, T.; Kobayashi, M.; Taketsugu, T.; Ito, H.; Fushimi, K.; Hasegawa, Y., Seven-Coordinate Luminophores: Brilliant Luminescence of Lanthanide Complexes with C-3v Geometrical Structures. *Eur. J. Inorg. Chem.* **2015**, (28), 4769-4774. (被引用回数 : 27)
 54. Yamamoto, E.; Ukigai, S.; Ito, H., Boryl substitution of functionalized aryl-, heteroaryl- and

	<p>alkenyl halides with silylborane and an alkoxy base: expanded scope and mechanistic studies. <i>Chem. Sci.</i> 2015, 6 (5), 2943-2951. (被引用回数 : 49)</p> <p>55. Uematsu, R.; Yamamoto, E.; Maeda, S.; Ito, H.; Taketsugu, T., Reaction Mechanism of the Anomalous Formal Nucleophilic Borylation of Organic Halides with Silylborane: Combined Theoretical and Experimental Studies. <i>J. Am. Chem. Soc.</i> 2015, 137 (12), 4090-4099. (被引用回数 : 58)</p> <p>56. Seki, T.; Sakurada, K.; Muromoto, M.; Ito, H., Photoinduced single-crystal-to-single-crystal phase transition and photosalient effect of a gold(I) isocyanide complex with shortening of intermolecular aurophilic bonds. <i>Chem. Sci.</i> 2015, 6 (2), 1491-1497. (被引用回数 : 85)</p> <p>57. Seki, T.; Sakurada, K.; Ito, H., Mismatched changes of the photoluminescence and crystalline structure of a mechanochromic gold(I) isocyanide complex. <i>Chem. Commun.</i> 2015, 51 (73), 13933-13936. (被引用回数 : 29)</p> <p>58. Seki, T.; Ozaki, T.; Okura, T.; Asakura, K.; Sakon, A.; Uekusa, H.; Ito, H., Interconvertible multiple photoluminescence color of a gold(I) isocyanide complex in the solid state: solvent-induced blue-shifted and mechano-responsive red-shifted photoluminescence. <i>Chem. Sci.</i> 2015, 6 (4), 2187-2195. (被引用回数 : 98)</p> <p>59. Sasaki, I.; Taguchi, J.; Hiraki, S.; Ito, H.; Ishiyama, T., Catalyst-Controlled Regiodivergent CH Borylation of Multifunctionalized Heteroarenes by Using Iridium Complexes. <i>Chem. Eur. J.</i> 2015, 21 (25), 9236-9241. (被引用回数 : 18)</p> <p>60. Omagari, S.; Nakanishi, T.; Seki, T.; Kitagawa, Y.; Takahata, Y.; Fushimi, K.; Ito, H.; Hasegawa, Y., Effective Photosensitized Energy Transfer of Nonanuclear Terbium Clusters Using Methyl Salicylate Derivatives. <i>J. Phys. Chem. A</i> 2015, 119 (10), 1943-1947. (被引用回数 : 22)</p> <p>61. Kubota, K.; Yamamoto, E.; Ito, H., Copper(I)-Catalyzed Enantioselective Nucleophilic Borylation of Aldehydes: An Efficient Route to Enantiomerically Enriched alpha-Alkoxyorganoboronate Esters. <i>J. Am. Chem. Soc.</i> 2015, 137 (1), 420-424. (被引用回数 : 0)</p> <p>62. Kubota, K.; Iwamoto, H.; Yamamoto, E.; Ito, H., Silicon-Tethered Strategy for Copper(I)-Catalyzed Stereo- and Regioselective Alkylboration of Alkynes. <i>Org. Lett.</i> 2015, 17 (3), 620-623. (被引用回数 : 46)</p> <p>63. Kubota, K.; Hayama, K.; Iwamoto, H.; Ito, H., Enantioselective Borylative Dearomatization of Indoles through Copper(I) Catalysis. <i>Angew. Chem. Int. Ed.</i> 2015, 54 (30), 8809-8813. (被引用回数 : 71)</p> <p>64. Iwamoto, H.; Kubota, K.; Yamamoto, E.; Ito, H., Copper(I)-catalyzed carbon-halogen bond-selective boryl substitution of alkyl halides bearing terminal alkene moieties. <i>Chem. Commun.</i> 2015, 51 (47), 9655-9658. (被引用回数 : 30)</p> <p>65. Hirai, Y.; Nakanishi, T.; Kitagawa, Y.; Fushimi, K.; Seki, T.; Ito, H.; Fueno, H.; Tanaka, K.; Satoh, T.; Hasegawa, Y., Luminescent Coordination Glass: Remarkable Morphological Strategy for Assembled Eu(III) Complexes. <i>Inorg. Chem.</i> 2015, 54 (9), 4364-4370. (被引用回数 : 22)</p> <p>66. Hasegawa, Y.; Sato, N.; Hirai, Y.; Nakanishi, T.; Kitagawa, Y.; Kobayashi, A.; Kato, M.; Seki, T.; Ito, H.; Fushimi, K., Enhanced Electric Dipole Transition in Lanthanide Complex with Organometallic Ruthenocene Units. <i>J. Phys. Chem. A</i> 2015, 119 (20), 4825-4833. (被引用回数 : 14)</p>
長谷川 靖哉	<p>1. Hasegawa, Y.; Matsui, T.; Kitagawa, Y.; Nakanishi, T.; Seki, T.; Ito, H.; Nakasaka, Y.; Masuda, T.; Fushimi, K., Near-IR Luminescent Yb(III) Coordination Polymers Composed of Pyrene Derivatives for Thermostable Oxygen Sensors. <i>Chem. Eur. J.</i> 2019, 25 (53), 12308-12315. (被引用回数 : 5)</p> <p>2. Yanagisawa, K.; Kitagawa, Y.; Nakanishi, T.; Seki, T.; Fushimi, K.; Ito, H.; Hasegawa, Y., A Luminescent Dinuclear Eu(III) /Tb(III) Complex with LMCT Band as a Single-Molecular Thermosensor. <i>Chem. Eur. J.</i> 2018, 24 (8), 1956-1961. (被引用回数 : 23)</p> <p>3. Yamamoto, M.; Kitagawa, Y.; Nakanishi, T.; Fushimi, K.; Hasegawa, Y., Ligand-Assisted Back Energy Transfer in Luminescent Tb(III) Complexes for Thermosensing Properties. <i>Chem. Eur. J.</i> 2018, 24 (67), 17719-17726. (被引用回数 : 9)</p> <p>4. Wada, S.; Kitagawa, Y.; Nakanishi, T.; Gon, M.; Tanaka, K.; Fushimi, K.; Chujo, Y.; Hasegawa, Y., Electronic chirality inversion of lanthanide complex induced by achiral molecules. <i>Sci. Rep.</i> 2018, 8 (1), 16395. (被引用回数 : 5)</p> <p>5. Hasegawa, Y.; Miura, Y.; Kitagawa, Y.; Wada, S.; Nakanishi, T.; Fushimi, K.; Seki, T.; Ito,</p>

- H.; Iwasa, T.; Taketsugu, T.; Gon, M.; Tanaka, K.; Chujo, Y.; Hattori, S.; Karasawa, M.; Ishii, K., Spiral Eu(III) coordination polymers with circularly polarized luminescence. *Chem. Commun.* **2018**, 54 (76), 10695-10697. (被引用回数 : 9)
6. Hasegawa, Y.; Kitagawa, Y.; Nakanishi, T., Effective photosensitized, electrosensitized, and mechanosensitized luminescence of lanthanide complexes. *NPG Asia Materials* **2018**, 10. (被引用回数 : 32)
 7. Dalafu, H. A.; Rosa, N.; James, D.; Asuigui, D. R. C.; McNamara, M.; Kawashima, A.; Omagari, S.; Nakanishi, T.; Hasegawa, Y.; Stoll, S. L., Solid-State and Nanoparticle Synthesis of EuSxSe1-x Solid Solutions. *Chem. Mater.* **2018**, 30 (9), 2954-2964. (見被引用回数 : 4)
 8. Hirai, Y.; Nakanishi, T.; Kitagawa, Y.; Fushimi, K.; Seki, T.; Ito, H.; Hasegawa, Y., Triboluminescence of Lanthanide Coordination Polymers with Face-to-Face Arranged Substituents. *Angew. Chem. Int. Ed.* **2017**, 56 (25), 7171-7175. (被引用回数 : 29)
 9. Hasegawa, Y.; Tateno, S.; Yamamoto, M.; Nakanishi, T.; Kitagawa, Y.; Seki, T.; Ito, H.; Fushimi, K., Effective Photo- and Triboluminescent Europium(III) Coordination Polymers with Rigid Triangular Spacer Ligands. *Chem. Eur. J.* **2017**, 23 (11), 2666-2672. (被引用回数 : 16)
 10. Wada, S.; Kitagawa, Y.; Nakanishi, T.; Fushimi, K.; Morisaki, Y.; Fujita, K.; Konishi, K.; Tanaka, K.; Chujo, Y.; Hasegawa, Y., The relationship between magneto-optical properties and molecular chirality. *NPG Asia Materials* **2016**, 8. (被引用回数 : 4)
 11. Onodera, H.; Kitagawa, Y.; Nakanishi, T.; Fushimi, K.; Hasegawa, Y., Acid-protected Eu(III) coordination nanoparticles covered with polystyrene. *J. Mater. Chem. C* **2016**, 4 (1), 75-81. (被引用回数 : 4)
 12. Omagari, S.; Nakanishi, T.; Kitagawa, Y.; Seki, T.; Fushimi, K.; Ito, H.; Meijerink, A.; Hasegawa, Y., Critical Role of Energy Transfer Between Terbium Ions for Suppression of Back Energy Transfer in Nonanuclear Terbium Clusters. *Sci. Rep.* **2016**, 6. (被引用回数 : 24)
 13. Nakajima, A.; Nakanishi, T.; Kitagawa, Y.; Seki, T.; Ito, H.; Fushimi, K.; Hasegawa, Y., Hyper-stable organo-Eu(III) luminophore under high temperature for photo-industrial application. *Sci. Rep.* **2016**, 6, 24458. (被引用回数 : 19)
 14. Hirai, Y.; Nakanishi, T.; Kitagawa, Y.; Fushimi, K.; Seki, T.; Ito, H.; Hasegawa, Y., Luminescent Europium(III) Coordination Zippers Linked with Thiophene-Based Bridges. *Angew. Chem. Int. Ed.* **2016**, 55 (39), 12059-62. (被引用回数 : 33)
 15. Omagari, S.; Nakanishi, T.; Seki, T.; Kitagawa, Y.; Takahata, Y.; Fushimi, K.; Ito, H.; Hasegawa, Y., Effective Photosensitized Energy Transfer of Nonanuclear Terbium Clusters Using Methyl Salicylate Derivatives. *J. Phys. Chem. A* **2015**, 119 (10), 1943-1947. (被引用回数 : 22)
 16. Hirai, Y.; Nakanishi, T.; Kitagawa, Y.; Fushimi, K.; Seki, T.; Ito, H.; Fueno, H.; Tanaka, K.; Satoh, T.; Hasegawa, Y., Luminescent Coordination Glass: Remarkable Morphological Strategy for Assembled Eu(III) Complexes. *Inorg. Chem.* **2015**, 54 (9), 4364-70. (被引用回数 : 22)
 17. Hasegawa, Y.; Sato, N.; Hirai, Y.; Nakanishi, T.; Kitagawa, Y.; Kobayashi, A.; Kato, M.; Seki, T.; Ito, H.; Fushimi, K., Enhanced electric dipole transition in lanthanide complex with organometallic ruthenocene units. *J. Phys. Chem. A* **2015**, 119 (20), 4825-33. (被引用回数 : 14)

大利 徹

 1. Ogasawara, Y.; Shigematsu, M.; Sato, S.; Kato, H.; Dairi, T., Involvement of Peptide Epimerization in Poly-gamma-glutamic Acid Biosynthesis. *Org. Lett.* **2019**, 21 (11), 3972-3975. (被引用回数 : 2)
 2. Ogasawara, Y.; Nakagawa, Y.; Maruyama, C.; Hamano, Y.; Dairi, T., In vitro characterization of MitE and MitB: Formation of N-acetylglucosaminyl-3-amino-5-hydroxybenzoyl-MmcB as a key intermediate in the biosynthesis of antitumor antibiotic mitomycins. *Bioorg. Med. Chem. Lett.* **2019**, 29 (16), 2076-2078. (被引用回数 : 0)
 3. Hayashi, S.; Satoh, Y.; Ogasawara, Y.; Maruyama, C.; Hamano, Y.; Ujihara, T.; Dairi, T., Control Mechanism for cis Double-Bond Formation by Polyunsaturated Fatty-Acid Synthases. *Angew. Chem. Int. Ed.* **2019**, 58 (8), 2326-2330. (被引用回数 : 9)
 4. Hayashi, S.; Naka, M.; Ikeuchi, K.; Ohtsuka, M.; Kobayashi, K.; Satoh, Y.; Ogasawara, Y.; Maruyama, C.; Hamano, Y.; Ujihara, T.; Dairi, T., Control Mechanism for Carbon-Chain Length in Polyunsaturated Fatty-Acid Synthases. *Angew. Chem. Int. Ed.* **2019**, 58 (20), 6605-6610. (被引用回数 : 6)

	<p>5. Takeda, K.; Kemmoku, K.; Satoh, Y.; Ogasawara, Y.; Shin-Ya, K.; Dairi, T., N-Phenylacetylation and Nonribosomal Peptide Synthetases with Substrate Promiscuity for Biosynthesis of Heptapeptide Variants, JBIR-78 and JBIR-95. <i>ACS Chem. Biol.</i> 2017, <i>12</i> (7), 1813-1819. (被引用回数 : 4)</p> <p>6. Kawata, J.; Naoe, T.; Ogasawara, Y.; Dairi, T., Biosynthesis of the Carbonylmethylene Structure Found in the Ketomemicin Class of Pseudotripeptides. <i>Angew. Chem. Int. Ed.</i> 2017, <i>56</i> (8), 2026-2029. (被引用回数 : 7)</p> <p>7. Ogasawara, Y.; Kawata, J.; Noike, M.; Satoh, Y.; Furihata, K.; Dairi, T., Exploring Peptide Ligase Orthologs in Actinobacteria-Discovery of Pseudopeptide Natural Products, Ketomemicins. <i>ACS Chem. Bio.</i> 2016, <i>11</i> (6), 1686-1692. (被引用回数 : 15)</p>
島田 敏宏	<p>1. Liu, W.; Yanase, T.; Iwasa, N.; Mukai, S.; Iwamura, S.; Nagahama, T.; Shimada, T., Post-annealed graphite carbon nitride nanoplates obtained by sugar-assisted exfoliation with improved visible-light photocatalytic performance. <i>J. Colloid Interface Sci.</i> 2020, <i>567</i>, 369-378. (被引用回数 : 0)</p> <p>2. Liu, W.; Yanase, T.; Iwasa, N.; Koizumi, H.; Mukai, S.; Iwamura, S.; Nagahama, T.; Shimada, T., Sugar-assisted mechanochemical exfoliation of graphitic carbon nitride for enhanced visible-light photocatalytic performance. <i>Int. J. Hydrogen Energ.</i> 2020, <i>45</i> (15), 8444-8455. (被引用回数 : 0)</p> <p>3. Liu, W.; Yanase, T.; Nagahama, T.; Shimada, T., Synthesis of carbon-doped boron nitride nanosheets and enhancement of their room-temperature ferromagnetic properties. <i>J. Alloy. Compd.</i> 2019, <i>792</i>, 1206-1212. (被引用回数 : 0)</p>

申請者氏名 伊藤 肇