

AI ソムリエ (電子舌)

1分・1滴で各種溶液の「指紋情報」を取得するダイヤモンド化学センサ

*1 産業技術総合研究所センシングシステム研究センター, *2 ExtenD

大曲 新矢^{*1, *2}, 中原 大哉^{*1},
竹村 謙信^{*1}, 森田 伸友^{*1},
岩崎 渉^{*1}, 北市 充^{*2}



大曲 新矢



北市 充

アブストラクト

電子舌 (electronic tongues) とは、単数もしくは複数の化学・物理センサをアレー状に配列し、得られたスペクトル信号をニューラルネットワークなどの機械学習で処理することにより、溶液の特徴を分類・解析するシステムである。これまで電子舌は、人工脂質膜、導電性ポリマー、分子刷込み高分子などを受容部に用いるため、感応膜の安定性と耐久性に課題を有していた。これに対し、高濃度ホウ素をドーピングした導電性のダイヤモンド電極は、材料特有の高い化学的安定性に起因するワイドレンジ・高感度検出が可能であり、電子舌センサとして高いポテンシャルを有している。我々はこのダイヤモンド電極を用い、1分・1滴で溶液情報を瞬時に評価できるシステムの開発を目指している。各種溶液のビッグデータ構築により、食品・飲料分野、ライフサイエンス、地質・環境などへの幅広い活用が期待される。

1. はじめに

内閣府の科学技術政策として掲げられた Society 5.0 では、

経済発展と社会的課題の解決を両立する人間中心の社会の実現が謳われており、価値ある情報の獲得手段としてデジタルトランスフォーメーション (DX) 化が進んでいる¹⁾。DX 化の一例として、医療費削減を期待した在宅医療、病気の非侵襲早期検出や、オンライン診療を促進するために、患者の血液、尿、唾液中の成分情報を簡易的にセンシングする技術の創出が必要とされている。また、人類活動の価値観は、「物質の豊かさ」から「心身の豊かさ」に変化しており、個人の価値観に基づく多選択社会へ移行しつつある。その中でも食の多様性、嗜好品のブランド化が進んでいくことが予想され、DX 化を組み合わせた新たな開発手法の提案が望まれている。

図 1 に電子舌の概念図を示す。一般的に、汎用センサでは、特定の標的成分を選択的に検出し数値化することを得意とするのに対し、電子舌は、多様な成分が混在した入力信号を扱い、物質の状態をマクロな視点で判断することを特徴とする。溶液から得られるセンサスペクトルは「指紋情報 (finger-print)」として扱われ、ニューラルネットワークなどの機械学習で解析することで、溶液の特徴や分類情報を抽出することが可能である²⁾。電子舌は、食品・飲料

大曲 新矢 (Shinya Ohmagari)

2012 年 九州大学大学院総合理工学府量子プロセス理工学博士後期課程修了, 博士 (工学)

2012 年 日本学術振興会特別研究員 (PD)

2013 年 産業技術総合研究所入所

現在 産業技術総合研究所センシングシステム研究センター主任研究員

2022 年 (株) ExtenD 最高技術責任者 (取締役) 就任

■主として行っている業務・研究

ダイヤモンド半導体の結晶成長と環境センシング, AI ソムリエ事業。

■勤務先

産業技術総合研究所センシングシステム研究センター

shinya.ohmagari@aist.go.jp

〒 841-0052 佐賀県鳥栖市宿町 807-1

(株) ExtenD

〒 841-0081 佐賀県鳥栖市壺方町 230-23

北市 充 (Mitsuru Kitaichi)

2008 年 立命館大学理工学部応用化学科卒業

2010 年 立命館大学大学院理工学研究科創造理工学専攻応用化学コース修士課程修了

2010 年 三星ダイヤモンド工業株式会社入社

現在 研究開発部技術研究課課長

(兼)ダイヤモンドビジネスプロジェクトサブプロジェクトリーダー

2022 年 (株) ExtenD 創業, 代表取締役

■主として行っている業務・研究

ダイヤモンド工具, 基板の精密加工技術開発, AI ソムリエ事業。

■勤務先

(株) ExtenD

m.kitaichi@extend-dia.co.jp

〒 841-0081 佐賀県鳥栖市壺方町 230-23

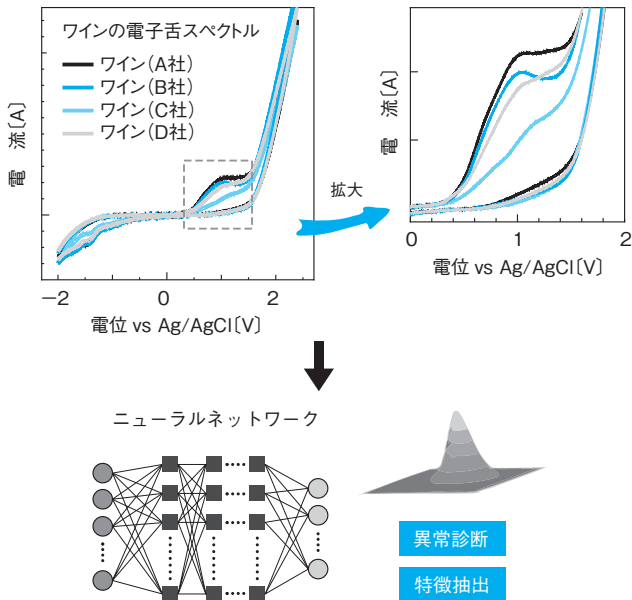
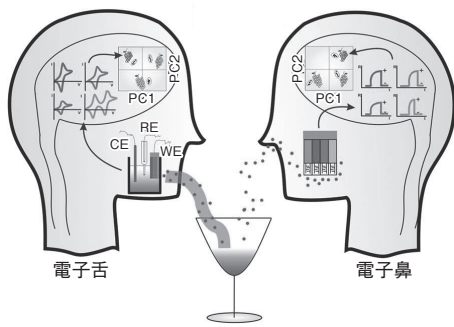


図1 電子舌の概念図。
単数もしくは複数の化学・物理センサからスペクトル信号を取得し、ニューラルネットワークなどの機械学習により溶液の特徴を分類・解析するシステムである

分野のDX化を強力に推し進めるエッジデバイスとしてのみならず、ビッグデータ解析からこれまで発見されていない関連性の発掘や予測（例えば、河川の水質から災害予知、ヒトの尿や汗からがん検知など）、異常検知などへの応用も期待されている³⁾。図2に「電子舌」に関する論文数の推移を示す。論文の年間平均増加率は+13%であり、2021年には324報の記事が報告されている。科学カテゴリー別で

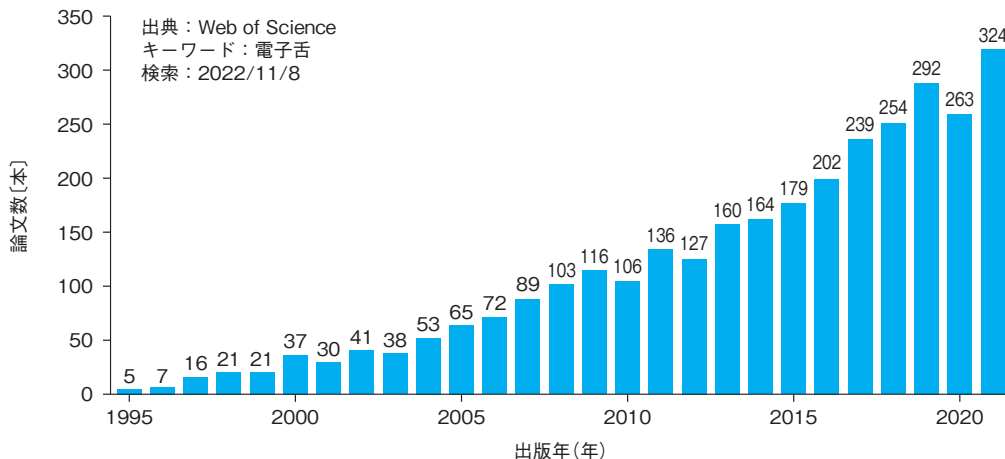


図2 「電子舌」に関する論文数の推移 (Web of Science で“electronic tongue”で検索)

は Chemical Analysis, Food Science Technology 分野で多くの報告があり、食品・化粧品の製品開発を対象としたセンシング技術や、ワインやビールの味と香り評価など、研究対象が多岐にわたる。一方で、医療・ヘルスケア分野での報告は少なく、これは機械学習での解析に値する十分なデータベースの構築が進んでいないことが一因と考えられる。食品・酒類製造のDX化や、健康状態の定期モニタリング、河川の多地点同時観測などは、バッチ処理プロセスでは実現不可能であり、ポータブル性に優れた小型のセンサ機器が望まれている。

2. ダイヤモンド電子舌

高濃度ホウ素をドーピングした導電性のダイヤモンド電極は、材料特有の高い化学的安定性に起因する大きな電位窓と小さなバックグラウンド電流を有しており、微量物質を高感度に検出する化学センサ用電極として注目されている⁴⁾。通常の化学電極では検出が難しい環境汚染物質の高感度センシング、バイオ、ヘルスケアモニタリングの応用展開が進められている⁵⁾。我々はこのダイヤモンド化学センサを、電子舌として利用することを提案する。図3に従来の電子舌とダイヤモンド電極を用いた電子舌の特徴比較を示す。人工脂質膜、導電性ポリマー、印刷金属電極、分子刷込み高分子などを受容部に用いた従来型の電子舌センサでは、

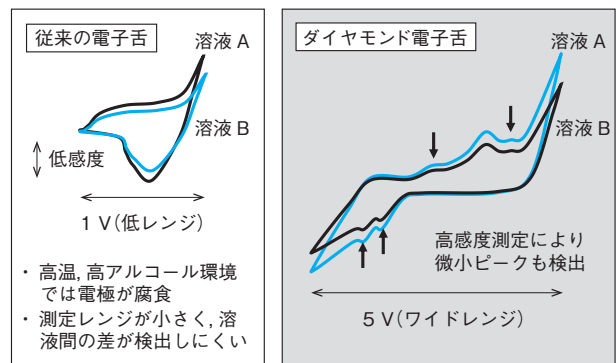


図3 従来の電子舌とダイヤモンド電極を用いた電子舌の比較。
ダイヤモンド電極の採用により、ワイドレンジかつ高感度測定ができ、高温、高アルコール環境、腐食環境下での測定が可能となる

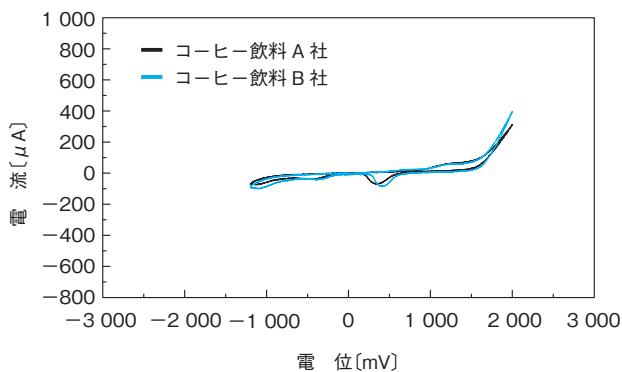
印加可能な電圧に制限があり、低感度であるために溶液間の差が検出しにくく、複数のセンサをアレー状に配列する必要があった。ダイヤモンドへの代替によって、単一のセンサ材料で、ワイドレンジに微弱なピークを高感度に検出が可能となり、さらに堅牢性の向上（高温、高アルコール濃度、腐食環境下などでの測定）が実現できる可能性がある。

図4に、金およびダイヤモンド電極を作用極に用いたサイクリックボルタモグラム^{†1}を示す。対極および参照極には、金属電極を用いた。ここでは、市販のペットボトルコーヒー飲料2種を測定した。金電極を作用極に用いた場合、2種のスペクトル信号差はわずかであり、±2V以上の電圧印加では水素・酸素発生の発生に伴う大きな電流が観測された。また、金では電圧印加に伴う自己溶出反応が生じており、バックグラウンド電流が大きく、電子舌の感度としては不十分であった。このような場合は、金電極単独で電子舌センサとして使用することは難しく、異種の化学センサをマルチチャンネル化する必要がある。一方で、ダイヤモ

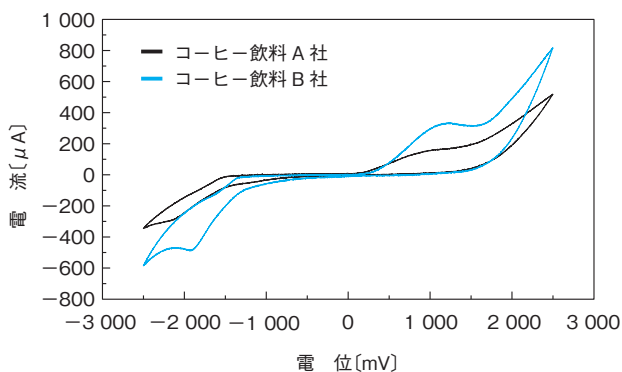
ンド電極を用いた場合は、2種のスペクトル差が明瞭に観測された。印加可能電位も大きく、他の作用極では計測が難しい高電位側での反応も高感度に検出が可能である。電子舌はスペクトル信号を「指紋情報」として取り扱うことを特徴としており、溶液中の特定の化学成分の検出は目的としていない。溶液ごとのスペクトル差を高感度に差別化することが、最も重要な要素である。これまでに100種類以上のワイン、コーヒー、焼酎、ウイスキーを測定しているが、それぞれ溶液ごとに異なるスペクトルが得られており、単一のセンサ材料で良質なデータ群が構築できる可能性を示している。電子舌のデータベース構築には、できるだけ短時間で簡易的に測定を完了し、測定前後の処理（洗浄、バッファ溶液による希釈など）が不要であることが望ましい。ダイヤモンドは素材自体が堅牢であり、高温、高アルコール溶液中でも特別な前処理をすることなく測定が可能である。また、大気で安定な表面終端基構造を有しており、センサ自身の保管にも特別なケアを必要としない。そのため、ポータブル性に優れており、ビッグデータを構築するためのエッジデバイスとして優れている。

3. 大型熱フィラメント CVD 法による BDD 電極の作製とチップばらつき評価

簡易計測が可能なポータブル型の電子舌センサを実現するために、脱着交換式（使い捨て）のダイヤモンドチップの開発を進めている。メンテナンスフリーで、繰り返し測定の安定性を高めるためには、①測定前後での電極清浄化処理、②電極表面への防汚機能付与、③基準液を使った相対評価による信号強度補正、などの方法があるが、測定の簡便性が失われてしまう。①～③については、引き続き研究開発が必要である。我々は、大型熱フィラメント CVD 法による多結晶薄膜の作製と、チップ安定性評価に取り組んだ。図5に薄膜成長時の様子と、BDD 薄膜の典型的な走査型電子顕微鏡写真を示す。熱フィラメント CVD 法によるダイヤモンド薄膜合成では、高融点のタングステンフィラメントワイヤを2200℃以上に通電加熱し、圧力5～40 Torr、メタン/水素ガス比1～6%、基板温度700～1100℃で薄膜を成長することが可能である。我々は、単結晶ダイヤモンド高濃度ホウ素ドーパのホモエピタキシャル成長条件を採用し⁶⁾⁷⁾、多結晶 BDD 薄膜を合成している。3インチ Si 基板上にダイヤモンド粉末による種付け処理後、複数枚同時に CVD 成長可能である。典型的な成長レートは0.2 μm/h であり、10時間の合成で約2 μmのハック膜を得ている。走査型電子顕微鏡像から、表面の多結晶ダイヤモンドの形態は無配向であり、約1 μmの結晶粒が観測されている。ホウ素ドーピング量は気相中のホウ素/炭素濃度比から制御が可能であり、BDD 電極成膜時は0.1～2%の濃度で作製している。使い捨てセンサの実現に向けて、ホウ素濃度、膜厚、結晶粒径の均一性をパラメータとして、電子舌セン



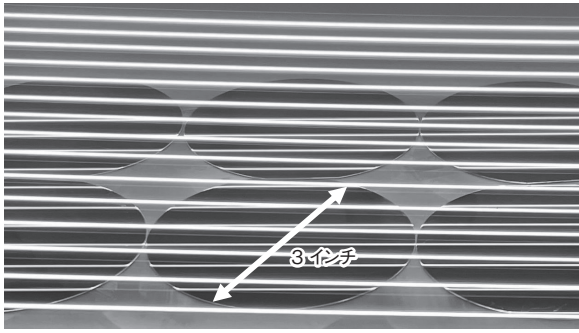
(a) 作用極：金



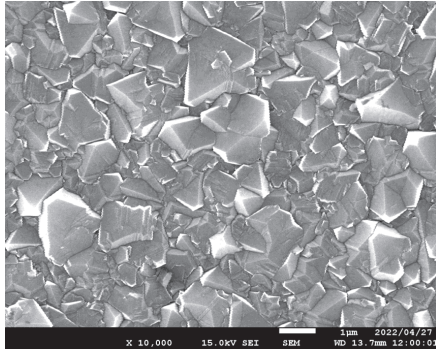
(b) 作用極：ダイヤモンド

図4 2種類のコーヒー飲料を対象とした、サイクリックボルタモグラム。作用極に金およびBDD電極を用い、溶液間のスペクトル信号強度差を評価した

†1 サイクリックボルタメトリー：作用極、参照極、対極の3電極を静止溶液中に浸して測定する。電気化学分野の中で最も多用される実験手法。横軸に印加電位、縦軸に応答電流をとった特徴的なピーク形状（サイクリックボルタモグラム）から、電気化学反応の機構、拡散係数、酸化還元電位を求め、物質の定量・定性評価が可能である。電位を正側に掃引すると酸化波が、負側に掃引すると還元波が形成される。作用極は、対象溶液との電子の授受を行う働きを担っており、電位掃引に伴う材料変化が小さいものが望ましい。本研究では作用極にダイヤモンドを用い、各種溶液から得られるサイクリックボルタモグラムを電子舌の信号として用いている。



(a) 多結晶ダイヤモンド薄膜の合成時の写真



(b) 走査型電子顕微鏡像

図5 大型熱フィラメントCVD装置による多結晶ダイヤモンド薄膜の合成時の写真(a)と走査型電子顕微鏡像(b)

サの感度を評価している。図6に、電子舌スペクトルのチップ間依存性を示す。本測定では、使い捨てセンサとして利用を想定し、1回測定ごとに新しい薄膜試料と交換した。被測定物には、同一の液体(コーヒー)を用いた。12チップ間でおおよそ同等のスペクトル形状を示しており、各種溶液の「指紋情報」を取得する電子舌センサとして高い性能を有していることがわかる。現状ではチップ間で15%程度のばらつきが観測されており、CVD成長パラメータの最適化による、さらなるチップ特性の安定性向上に取り組んでいる。

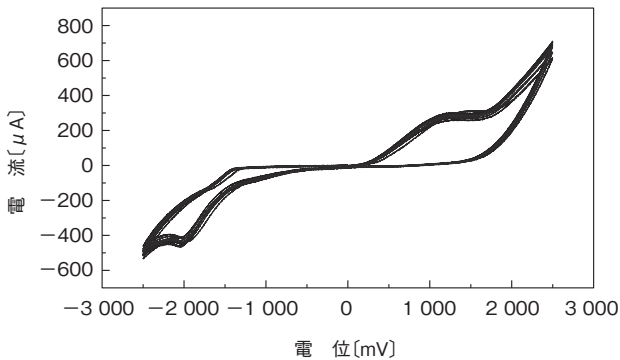


図6 電子舌スペクトル(サイクリックボルタモグラム)のチップ間依存性。測定には同一の溶液(コーヒー)を用い、1回測定ごとに異なるBDD電極を用いた

4. 酒類用センサへの展開

日本の酒類消費量は少子化や若者のお酒離れの影響から、市場成長率は横ばい傾向が続いているが、海外では日本産酒類は好調であり、輸出は拡大傾向が続いている。「国税庁の日本産酒類の輸出動向」によれば、2021年の輸出金額は初めて1,000億円を突破し、10年連続で過去最高を更新している⁸⁾。とりわけ、ウイスキー、清酒、リキュール、ワインの海外人気が高く、輸出額の増加を牽引している(それぞれ前年比増+39.4%、+3.1%、+33.9%、+99.8%)。この拡大傾向を維持するため、「味の向上」と「ブランド力強化」に取り組み、クールジャパン戦略を推進していく必要がある。

酒類業界では、同一ブランド製品を各地の工場生産し、その品質の統一を図るため、また小規模の醸造所では地域の特徴を生かした製品を開発するため、発酵職人による「官能評価」は最も重要なプロセス工程である。(独)酒類総合研究所では、毎年官能評価セミナーを開催しており、において、酸味・甘味の識別法、標準見本を用いたにお味の確認訓練、記述的試験法(プロファイリング法)の訓練など、専門家の養成に取り組んでいる。しかしながら官能評価は、人間の味覚、嗅覚、視覚による定性的な評価法であるため、人によって感受性が異なり、また評価者は外的要因(体調、思い込み、固定概念など)にも影響を受ける。定量的な官能データの取得は、日々の醸造管理のみならず、新規参入者や後継者不足の解消においても重要な課題となっている。

国税庁の酒類統計⁹⁾によると、酒類業者のうち約90%が中小企業であり、製造に携わる人数は一社平均で数人~十人規模とされている。大企業の場合は、3,000~5,000リットル級の大型ステンレスタンクを導入し、緻密なデータ計測(温度、酸度、糖度、アルコール度、pHなどのログ)によって、味のばらつきを低減している。また、酒類の成分分析では、液体クロマトグラフィーやFTIR、味覚センサなどを取り入れ、製品開発に活用する例がある。しかし中小企業の場合、大型装置導入による費用対効果が小さいため、ほとんどの場合で発酵職人が「経験と勘」を頼りに製品開発を行っている実態がある。また、酒造メーカーの後継者不足も深刻な課題である。昨今では、日本酒の若者離れから売上が落ち込み、年間30件のペースで蔵元が廃業に追い込まれている。科学的なデータの分析や蓄積によって、温度や各成分の徹底管理が進むようになったが、官能評価のみ代替技術がなく、属人性の高い製品づくりが継続している。國酒の伝統を次世代に継承し、さらなる「味の向上」と「ブランド力強化」を実現するためには、発酵・貯酒管理プロセスで使用可能な定量データの構築が重要である。

我々は、ダイヤモンド電子舌によって酒類の「指紋情報」を簡易的に取得し、機械学習によって官能評価を代替するデータベースの構築を目指している。最終目標は、酒の「指

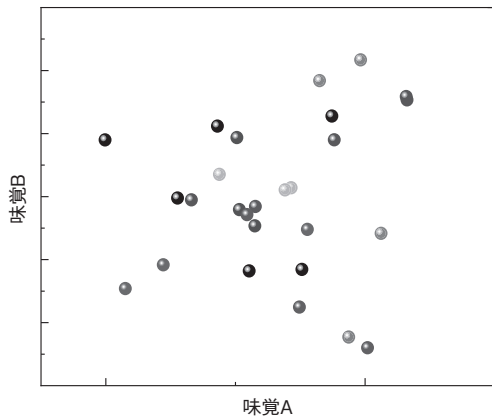


図7 ダイヤモンド電子舌を用いて評価した赤ワインの分類マップの例。それぞれのプロットは、異なるワインの測定結果を反映している

紋情報」を測定しただけで、人間の官能評価（味の評点、香りの評点など）を再現することにある。これにより、人の感性に左右されない、電子的な官能評価結果の獲得（AIソムリエ）が実現可能となる。従来のセンシング技術では難しかった、微妙な味の変化をマクロスコピックに検出し、酒類製造、流通、消費の各セグメントでの活用を目指している。

図7に、ダイヤモンド電子舌で評価した赤ワインの分類マッピング例を示す。ダイヤモンド電極を用いた電気化学測定により、ビンテージ、品種、産地ごとに異なるワインの「指紋情報」を計測し、演算処理によってそれぞれの特徴を分離した。それぞれのワインにおいて、異なるスペクトル形状が得られており、分類マップ上で有意な差別化が確認できた。今後、さらなるデータベースの構築と機械学習の併用により、人間の感性データとの相関付けを試みる予定である。

5. ベンチャー企業創出

2022年7月4日、(株) ExtenDを創業した。ダイヤモンドでしか実現できない世界を創造し、次の100年を牽引する新たな産業をつくり出すという大きなミッションを掲げ、スタートした。我々はこれまで宝石・工具へ素材として利用されてきたダイヤモンド（Diamond 1.0）を、エレクトロニクス用途に拡張する「Diamond 2.0」の実現を目指す。一方で、単に他材料をダイヤモンドに置き換えただけでは、高品質、高信頼性、かつ低価格化が求められる、弱肉強食のモノづくり産業を生み出すことに帰結すると考えている。我々は、既存材料の置換えには主眼を置かず、「全く新しいニーズ（イノベーション）」を発明するとともに、「ダイヤモンドでのみ実現できるアプリケーション」を提案する。その最初の取組みとして、AIソムリエ事業を掲げた。酒類製造・流通・消費のDX化は今後注目される成長分野であり、醸造現場でのモニタリング（官能評価の代替）、貯酒管理工程、ブレンドワインの作製、流通管理、お酒の味マップの構築を通して、酒の人気、価値向上につながる取組みを推



図8 カートリッジ式のダイヤモンドチップを搭載した、ポータブル型のAIソムリエ測定システム

進する。

図8にダイヤモンドカートリッジ式の使い捨てセンサを利用した、ポータブル型の測定システムを示す。スマートフォンやタブレット端末と連結することで、1分・1滴でその場測定が可能となる。酒のビッグデータの構築により、酒類製造、流通、消費を垂直統合型で結ぶDX化に取り組む。AIソムリエ事業を軸に、ダイヤモンドの革新的なアプリケーションを創造し、社会貢献を実現していく。

6. まとめ

ダイヤモンドの新しい使い方として、電子舌センサを提案した。高濃度ホウ素をドープしたダイヤモンド電極を作用極に用い、電気化学測定することにより、ワイドレンジかつ高感度に溶液ごとの差を瞬時に判別できることを確認した。分析時間は約1分で、ラマンやFTIRなどの各種分光学的手法と比べ短時間であり、かつポータブル性に優れることを特徴とする。ダイヤモンド電子舌で得られたスペクトルを統計的に解析することにより、特徴分類、異常診断に応用が期待できる。ベンチャー企業の(株)ExtenDでは、「ダイヤモンドでのみ実現できるアプリケーション」を提案し、その中の一つとしてAIソムリエ事業を開始した。発酵・貯酒管理工程、流通管理、ブレンドワインの作製、味わいマップの構築など、酒類の価値向上に向けた取組みを推進していく。

謝辞

本研究の一部は、JST SCORE チーム推進型 JPMJST2133 および JST 研究成果展開事業研究成果最適展開支援プログラム A-STEP 産学共同 JPMJTR22R2 の支援を受けたものである。

参 考 文 献

- 1) 内閣府ホームページ Society 5.0 (n.d.), https://www8.cao.go.jp/cstp/society5_0/index.html
- 2) A. Riul, C. A. R. Dantas, C. M. Miyazaki and O. N. Oliveira: Recent advances in electronic tongues, *Analyst*, **135**, pp. 2481-2495 (2010), <https://doi.org/10.1039/c0an00292e>
- 3) M. Podrazka, E. Bącznyńska, M. Kundys, P. S. Jeleń and E. W. Nery: Electronic tongue-A tool for all tastes?, *Biosensors*, **8**, pp. 1-24 (2017), <https://doi.org/10.3390/bios8010003>
- 4) Y. Einaga: Development of electrochemical applications of boron-doped diamond electrodes, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, **91**, pp. 1752-1762 (2018), <https://doi.org/10.1246/bcsj.20180268>
- 5) K. Takemura, W. Iwasaki, N. Morita and S. Ohmagari: High-density and monodisperse electrochemical gold nanoparticle synthesis utilizing the properties of boron-doped diamond electrodes, *Nanomaterials*, **12** (2022), <https://doi.org/10.3390/nano12101741>
- 6) S. Ohmagari, K. Srimongkon, H. Yamada, H. Umezawa, N. Tsubouchi, A. Chayahara, S. Shikata and Y. Mokuno: Low resistivity p⁺ diamond (1 0 0) films fabricated by hot-filament chemical vapor deposition, *Diam. Relat. Mater.*, **58** (2015), <https://doi.org/10.1016/j.diamond.2015.06.011>
- 7) S. Ohmagari, H. Yamada, H. Umezawa, N. Tsubouchi, A. Chayahara and Y. Mokuno: Growth and characterization of freestanding p⁺ diamond (1 0 0) substrates prepared by hot-filament chemical vapor deposition, *Diam. Relat. Mater.*, **81**, pp. 33-37 (2017), <https://doi.org/10.1016/j.diamond.2017.11.003>
- 8) 国税庁：酒類の輸出動向, https://www.nta.go.jp/taxes/sake/yushutsu/yushutsu_tokei/index.htm (accessed Nov. 13, 2022)
- 9) 国税庁：酒類統計, <https://www.nta.go.jp/taxes/sake/tokei/mokuji.htm> (accessed Nov. 13, 2022)

中原 大哉 (Hiroya Nakahara)

2020年 九州大学大学院総合理工学部量子プロセス理工学修士課程入学
現在 産業技術総合研究所センシングシステム研究センター
リサーチアシスタント

■主として行っている業務・研究

ダイヤモンド薄膜の作製と評価, 電子舌センサの研究開発.

■連絡先

産業技術総合研究所センシングシステム研究センター
nakahara.hiroya507@aist.go.jp
〒841-0052 佐賀県鳥栖市宿町 807-1

竹村 謙信 (Kenshin Takemura)

2021年 静岡大学大学院自然科学系教育部バイオサイエンス専攻博士後
期課程修了, 博士 (工学)

2020～21年 日本学術振興会特別研究員 (DC 2)

2021年 産業技術総合研究所入所

現在 産業技術総合研究所センシングシステム研究センター研究員

■主として行っている業務・研究

高活性ナノ粒子修飾電極および迅速・簡便な電気化学重金属センサの
研究開発.

■勤務先

産業技術総合研究所センシングシステム研究センター
takemura.kenshin@aist.go.jp
〒841-0052 佐賀県鳥栖市宿町 807-1

森田 伸友 (Nobutomo Morita)

2017年 九州大学大学院システム生命科学府システム生命科学専攻一貫
性博士課程修了, 博士 (工学)

2016～17年 日本学術振興会特別研究員 (DC 2)

2017年 産業技術総合研究所入所

現在 産業技術総合研究所センシングシステム研究センター研究員

■主として行っている業務・研究

MEMS, 半導体プロセスによる超小型センサおよびセンサシステムの
研究開発.

■勤務先

産業技術総合研究所センシングシステム研究センター
morita.nobutomo@aist.go.jp
〒841-0052 佐賀県鳥栖市宿町 807-1

岩崎 渉 (Wataru Iwasaki)

2013年 九州大学大学院システム生命科学府システム生命科学専攻一貫
制博士課程修了, 博士 (工学)

2013年 産業技術総合研究所入所

現在 産業技術総合研究所センシングシステム研究センター主任研究
員, 佐賀大学大学院理工学研究科准教授 (兼務)

■主として行っている業務・研究

その場分析向け化学センサの開発, 化学センサのIoT化.

■勤務先

産業技術総合研究所センシングシステム研究センター
wataru.iwasaki@aist.go.jp
〒841-0052 佐賀県鳥栖市宿町 807-1