

令和 6 年 6 月 10 日現在

機関番号：11501

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2023

課題番号：19K02291

研究課題名（和文）国産原料を用いた機能性豊かな無塩醤油様調味料の製造技術開発研究

研究課題名（英文）Development of unsalted soy sauce-like condiments with high functionality using domestically produced ingredients

研究代表者

永井 毅（Nagai, Takeshi）

山形大学・農学部・教授

研究者番号：10385502

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：本研究は国産原料（普通小豆、米、小麦）を用いた機能性豊かな新たな無塩醤油様調味料の製造技術開発を行うことを目的とした。食塩水の代わりに5-20%エタノールで調製した醤油様調味料では、いずれも市販醤油に類似した色彩を示したが、グルタミン酸含量が低くうま味が弱かった。調味料は総フェノール量ならびに総フラボノイド量が高く、顕著に高い抗酸化性やラジカル消去活性、優れた血圧上昇抑制ならびに抗炎症・抗アレルギー効果が認められた。一方、市販醤油同様の食味を有する醤油様調味料の調製には、5%程度の食塩の含有は重要な要素であることを明らかとした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

醤油は和食に欠くことができない調味料であるが、流通する品は塩分含量の高いものが多い。塩分過剰摂取は高血圧、脳卒中、心臓病、腎臓病、胃がん、骨粗鬆症などの原因となる。生活習慣病の発症予防のために減塩が推奨されている。安全・安心な国産原料に対するニーズは高く、これらを活用した新たな醤油様調味料の製造技術開発は食料自給率向上にも寄与する。開発醤油様調味料は優れた健康機能性を有する一方、食味に課題が認められた。流通醤油同等の食味を有する醤油様調味料とするためには、5%程度の食塩の含有が必要であることを突き止めた。これは流通する減塩醤油の塩分量を大幅に減少可能であることを示す意義ある成果である。

研究成果の概要（英文）：We tried to develop the unsalted soy sauce-like condiments with high functionality using domestically produced ingredients, such as adzuki bean, rice, and wheat. The moromi did not spoiled during fermentation at room temperature. The physicochemical properties of these condiments obtained were different from those of commercially available koikuchi and tamari soy sauces. The condiments perfectly inhibited the linoleic acid oxidation. These condiments possessed powerful scavenging activities against DPPH radicals, superoxide anion radicals, and hydroxyl radicals. In addition, these exhibited not only ACE inhibitory activities but also hyaluronidase inhibitory activities. By sensory analysis, the tastes were inferior to commercially available soy-sauces. Therefore, we prepared the soy sauce-like condiments containing 0-5.0% salts. It finally found that approximately 3-5% salts were essential factors for the production of soy sauce-like condiments with good sensory acceptability.

研究分野：食品加工学

キーワード：無塩醤油様調味料 製造技術開発 国産原料 健康機能性 呈味性 食塩

1. 研究開始当時の背景

ユネスコ無形文化遺産の「和食」は世界中から注目されている。和食において「醤油」は欠くことができない調味料である。醤油の醸造研究は、麴の産生する酵素作用による原材料に含有する糖質、たんぱく質、脂質の分解・代謝に関するものや、品質、特に色・味・香りの観点から重点的に行われてきた。近年容器包装の工夫により、これらの品質を保持した鮮度保持製品が流通している。一方臨床研究では、醤油に含有する多糖類の抗アレルギー作用(Int. J. Mol. Med., 15, 463-467, 2005)や鉄吸収促進効果(Int. J. Mol. Med., 18, 1159-1163, 2006)などの機能が明らかとなっている。

一般に醤油は塩分濃度が高い。特に、日本人は世界的にみても食塩摂取量が多い。塩分の過剰摂取は高血圧の主因であり、高血圧は直接脳卒中、心臓病、腎臓病の原因となる。近年では、胃がんや骨粗鬆症の原因になることも明らかとなっている。これらの生活習慣病の発症予防の観点から、日本人の食事摂取基準(2015年版)では、1日あたりの食塩相当量の目標量を成人男性8g未満、同女性7g未満に設定し「減塩」を推奨するものの、欧米と比較して遅れた現状にあり、食塩摂取量の男女平均値は10gと高い(日本人の食事摂取基準(2020年版)では、高血圧予防の観点から食塩摂取量の目標量をさらに低く設定しており、成人男性7.5g未満、同女性6.5g未満である)。世界においても食生活における減塩は最重要課題である。

ライフスタイルの変化とともに、消費者の安全・安心に対するニーズは高まる傾向にあり、国産原料を活用した高品質かつ優れた機能性を有する加工食品が求められている。また、食事における塩分摂取をコントロールする方法には、塩分含有量の高い加工食品を避けること、調味料の使用量の制限すること、減塩調味料の使用、カリウムの積極的な摂取などが考えられる。

以上より、本研究では国産原料(普通小豆、米、小麦玄麦)を用いて、美味な醤油様調味料の開発、特に食塩無添加条件下において、酸敗を防止して醤油様調味料の醸造が可能か、既存醤油との比較により、小仕込みした醤油様調味料の健康機能性における優位性の解明を目標とした。

2. 研究の目的

一般に醤油は、大豆や小麦に種麴(醤油用麴菌)を播種し調製した麴を、高濃度の食塩水に混合後、もろみを発酵・熟成させて製造する。醤油の塩分濃度(食塩相当量)は13-16%(日本食品標準成分表(八訂)増補2023年)と高い。最適濃度の食塩水の添加は、もろみの酸敗の防止や耐塩性乳酸菌・酵母の増殖、麴菌由来の酵素作用による発酵の促進に必須条件となっている。しかし、伝統的醤油製造を行う業界では、塩分摂取量を減少させる根本的な解決に至る研究開発はみられない。本研究では、醤油生産量の約8割を占める「濃口醤油」と「たまり醤油」を対照として、食塩無添加かつ酸敗を起こさない新たな製法確立による機能性豊かな醤油様調味料の製造技術開発を目指した。

3. 研究の方法

1) 無塩醤油様調味料の調製

無塩醤油様調味料は日本農林規格(本醸造方式)により調製した。原材料として、普通小豆(北海道産)、国産米(うるち、もち)、小麦玄麦(岩手県産ゆきちから)を用いた。うるち米は作付上位品種を、もち米はヒメノモチ(山形県産)とした。種麴は秋田今野商店を使用した。もろみは、食塩水の代わりに5-20%エタノールで仕込んだ。発酵・熟成は、室温下(24℃)-1年間と

した。

2) 製麹した麹の各種酵素活性の測定

第4回改訂国税庁所定分析注解(日本醸造協会, 1993)に基づき、 α -アミラーゼ、グルコアミラーゼ、 β -グルコシダーゼ、酸性カルボキシペプチダーゼ活性を測定した。

3) もろみならびに醤油様調味料の特性評価

品質検査は、しょうゆ分析法(日本醤油研究所, 1985)に従い行った。測定項目は、全窒素、ホルモール窒素、無塩可溶性固形分、糖用屈折示度、食塩、アルコール、色彩、全糖、直接還元糖、グルタミン酸、酸度(I, II)、比重、密度、pH、官能検査とした。

4. 研究成果

1) 麹の調製

蒸煮小豆、蒸煮米、炒ごう・割砕小麦に種麹を播種し製麹したところ、もち米を除き破精回り良好な麹の調製は可能であった。麹の各種酵素の力価を検討したところ、麹の種類により各酵素活性に違いが認められたものの、いずれも醤油の製造に適していると考えられた。以下、一例として小豆、米(山形県産はえぬき)、小麦を用いた結果を示した(表1)。

表1. 麹の各種酵素活性の比較(U/g) (n=3)

種類	小豆麹	小豆 + 小麦麹	米麹	米 + 小麦麹
α -アミラーゼ	4,327.2	2,971.9	3,325.1	2,310.3
グルコアミラーゼ	96.0	76.7	183.0	121.8
β -グルコシダーゼ	0.0068	0.0120	0.0479	0.0445
酸性カルボキシペプチダーゼ	453.4	1,232.1	545.0	384.7

2) 無塩醤油様調味料の開発

生産量の多い「濃口醤油」と「たまり醤油」の製法をもとに、2種類の無塩醤油様調味料を小仕込みした。濃口醤油様調味料には普通小豆または米と小麦を、たまり醤油様調味料には普通小豆または米のみを用いた。もろみは毎日攪入れした。もろみの pH は仕込み時いずれも 6.25 であったが、64 日後では 5.97-6.05 に、102 日後では 5.86-5.96 に低下した。さらに 6 ヶ月後では 5.04-5.92 となり、順調な発酵の進行を確認した。発酵終了後のもろみは濾布でろ過し、生醤油様調味料を得た。これらは湯煎で 80 -10 分間火入れ後、静置・おり引きし、無塩醤油様調味料とした。なお、醤油用麹菌以外の麹を用いて同様に調味料を調製したが、予備的に実施した官能試験の結果醤油様調味料は調製できなかった。

3) 成分分析および官能評価

成分分析を行ったところ、市販醤油(A および B: 濃口醤油, C: たまり醤油)と比較して全窒素およびホルモール窒素含量が低かった(表2)。無塩可溶性固形分(エキス分)は、小豆のみの場合いずれも低い、小豆 + 小麦では市販醤油と同等または高い傾向が認められた。一方、米を用いた場合、いずれも高かった。小豆を用いた場合の糖用屈折示度(Brix%)はいずれも低く、特に小豆のみでは市販醤油の半分程度であった。一方、米の場合では市販醤油と同等であった。食塩相当量は 0.1%未満であり、ほとんど検出されなかった。アルコールは仕込み時のエタノール濃度に比例し、その残存量として検出された。全糖量および直接還元糖量ともに

市販醤油より顕著に高かった。グルタミン酸量は、市販醤油と比較して低く、うま味が弱いことを示唆した。特に米の場合、小豆のそれらの半分以下であった。pHは5以上であり、市販醤油より高かった。5段階評価による官能評価では、小豆のみ、特に10%エタノール仕込みの場合、甘く芳醇な芳香と醤油様のコクのある良食味を呈した。一方、小豆+小麦では、エタノール濃度が高くなるに従い苦味が強くなり、醤油の味にはほど遠いものとなった。また、米の場合苦味は強く、甘酸っぱい味を呈した。

表2. 無塩醤油様調味料の物理化学的特性(n=3)

	小豆-5%	小豆-10%	小豆-20%	小豆+小麦 -5%	小豆+小麦 -10%	小豆+小麦 -20%	米-20%	米+小麦 -20%	A	B	C
全窒素(%)	0.85	0.81	0.92	1.15	1.10	0.99	0.53	0.72	1.65	1.59	1.63
ホルモール窒素(%)	0.45	0.37	0.44	0.51	0.48	0.41	0.21	0.37	0.87	0.78	0.92
無塩可溶性固形分(%)	15.9	18.6	18.0	23.7	25.7	27.7	34.0	36.7	19.5	17.6	24.0
糖用屈折示度(%)	16.0	18.7	18.1	23.8	25.8	27.8	34.0	36.7	34.8	33.1	39.4
食塩相当量(%)	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	0	0	15.3	15.5	15.4
アルコール(%)	3.01	6.59	10.13	2.97	6.48	10.82	11.09	10.14	3.21	2.93	3.03
全糖(%)	6.18	8.20	6.65	13.12	13.85	17.14	25.40	30.25	4.69	2.94	7.17
直接還元糖(%)	3.85	4.36	3.32	8.37	8.13	8.42	14.88	16.37	2.09	1.00	3.86
グルタミン酸(mg/100g)	1,904.6	1,960.2	1,915.7	2,113.5	1,969.3	1,783.6	820.1	852.4	3,052.8	2,923.8	3,026.8
酸度I(ml)	7.0	3.5	4.0	7.0	5.5	5.0	2.5	4.1	11.0	10.5	13.5
酸度II(ml)	4.5	5.5	4.5	6.5	7.0	7.5	2.0	4.0	11.5	9.5	12.0
比重(20)	1.035	1.025	1.040	1.072	1.068	1.052	1.091	1.107	1.142	1.145	1.179
密度(g/cm ³)	1.035	1.025	1.040	1.072	1.068	1.052	1.091	1.107	1.142	1.145	1.179
pH	5.09	5.92	5.58	5.23	5.37	5.57	5.06	5.04	4.65	4.54	4.52
官能評価(5段階評価)	2	3	2	2	1	1	1	1	4	5	4

4) 機能性成分量と機能性解析

機能性成分含量を測定した結果、小豆では、総ポリフェノール含量ならびに総フラボノイド含量いずれにおいても、10%エタノール区で最も高く、小豆+小麦では、どの試験区でも高く、エタノール濃度上昇とともに高くなった(表3)。これは、米を用いた場合も同様の傾向が認められた。抗酸化性試験では、すべての無塩醤油様調味料でリノール酸自動酸化を完全に抑制した。1,1-ジフェニル-2-ピクリルヒドラジル(DPPH)ラジカル消去活性は、小豆のみでは62.8-73.6%、小豆+小麦では78.7-88.0%、米のみでは84.2%、米+小麦では90.3%といずれも顕著に高かった。スーパーオキシドアニオンラジカルに対して、小豆-5%エタノール区および20%エタノール区、小豆+小麦-5%エタノール区は84.7-98.9%消去し、それ以外の試験区では完全に消去した。ヒドロキシルラジカル消去活性は、小豆のみならびに小豆+小麦-10%エタノール区で最も高い活性を示した。米を用いた場合も同等の活性を示した。アンギオテンシンⅠ変換酵素(ACE)阻害活性は、市販醤油と比較し、いずれも顕著に高かった(53.8-71.5%)。さらに、ヒアルロニダーゼ阻害活性は、小豆+小麦区および米+小麦区では認められ、特に小豆+小麦を用いた場合、エタノール濃度上昇とともに高くなる傾向がみられた。なかでも、20%区では顕著に高い活性を示した(89.1%)。こ

これらの機能性には、小豆に含有しエタノール可溶性フェノール類ならびに発酵により生成された原材料由来ペプチドの寄与が示唆された。詳細は今後検討する予定である。

表3. 無塩醤油様調味料の機能性成分含量ならびに機能性解析(n=3)

	小豆	小豆	小豆	小豆+小麦	小豆+小麦	小豆+小麦	米	米+小麦	A	B	C
	-5%	-10%	-20%	-5%	-10%	小麦-20%	-20%	-20%			
総ポリフェノール (mgクエルセチン等量/100 g)	192.6	222.8	182.5	279.3	323.7	365.1	161.7	193.5	337.2	357.2	459.6
総フラボノイド (mgクエルセチン等量/100 g)	10.1	14.8	12.6	16.6	38.2	39.1	54.2	70.9	13.3	12.5	84.4
抗酸化性(%)	>100	>100	>100	>100	>100	>100	>100	>100	>100	>100	98.3
DPPH 消去活性(%)	65.7	62.8	73.6	88.0	82.4	78.7	84.2	90.3	85.3	86.6	88.5
スーパーオキシドラジカル消去活性(%)	84.7	>100	86.1	98.9	>100	>100	>100	>100	96.7	96.4	>100
ヒドロキシルラジカル消去活性(%)	48.5	68.7	59.6	56.0	65.4	50.1	57.9	62.5	55.8	67.4	62.9
ACE 阻害活性(%)	55.1	53.8	62.0	67.1	70.2	71.5	54.8	69.2	35.1	28.7	29.5
ヒアルロニターゼ阻害活性(%)	0	0	0	21.8	44.4	89.1	0	51.7	56.0	39.3	76.7

5)無塩醤油様調味料の食味改良

以上より、国産原料(普通小豆、米、小麦玄麦)を用いて、室温で腐敗することなく無塩醤油様調味料の調製が可能となった。これらの調味料は、優れた抗酸化性、ラジカル消去活性、血圧上昇抑制ならびに抗アレルギー・抗炎症作用を示すことを解明した。一方、現在の市販醤油を基準とした場合、食味、特に塩味の不足が無塩醤油様調味料の味のバランスに影響することが明らかとなった。そこで、0-5%食塩含有の醤油様調味料を調製し官能試験を実施した。その結果、どの醤油様調味料を用いた場合でも食塩含量の増加に伴い市販醤油の食味に近づくことを明らかとした⁷。例：米-小麦-10%エタノールの場合、食塩 0.2 および 0.3%(塩味の感知)、同 0.5%(食味に深みが増加)、同 1.0%(食味の深みの更なる増加、コクの感知)、同 3.0%(食味バランス改善)、同 5.0%(食味バランス良好、味の深み、醤油様の味)』。

まとめ

一連の研究により、今回用いた調製法では食味良好な無塩醤油様調味料の製造には至らなかった。一方、3-5%食塩の含有により、減塩した醤油様調味料の製造は可能であることを見出した。日本食品標準成分表(八訂)増補2023年によると、醤油の食塩相当量は13-16%と高い。また、濃口醤油(減塩)ならびに薄口醤油(低塩)の食塩相当量はそれぞれ 8.3、12.8%である。本研究成果は、醤油の食味を保持しつつ、更に減塩した優れた機能性を有する醤油の製造が可能であることを示しており、食生活の質向上や食生活環境の改善に大きく資することとなる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計0件

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<https://www.tr.yamagata-u.ac.jp/~tnagai/saito/WELCOME.html>

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------