

# アミン - 銅錯体水溶液からのキュウリによる銅吸収

岩 崎 貢 三

(農学部生物環境化学講座)

## Copper Uptake from the Solution of Amine-copper Chelates by Cucumber Plants

Kōzō IWASAKI \*

*\*Chair of Agro-Environmental Chemistry, Faculty of Agriculture*

**Abstract :** Effect of amine-Cu chelates on the growth and Cu content of cucumber plants was studied by solution culture experiments.

In the first experiment, triethylenetetramine (Trien) was employed as a synthetic chelating agent which forms positively charged amine-Cu chelates. When the plants were grown in the nutrient solution containing  $5 \mu\text{M}$   $\text{CuCl}_2$  and  $5 \mu\text{M}$  Trien for 3 weeks, the shoot Cu contents were remarkably higher than those of the plants grown in the nutrient solution containing  $5 \mu\text{M}$   $\text{CuCl}_2$ . While leaf chlorosis and severe growth reduction due to the  $\text{Cu}^{2+}$  toxicity occurred in the absence of Trien, no  $\text{Cu}^{2+}$  toxicity symptom was observed in the plants supplied with Trien in spite of the higher Cu contents in the shoots. Their plant heights were almost the same as those grown without excess Cu. These results indicated that the positively charged Cu-Trien chelates were readily absorbed and translocated from the roots to shoots as compared with the  $\text{Cu}^{2+}$ . Moreover, it was considered that the translocated Cu-Trien chelates were stable within the shoots and therefore  $\text{Cu}^{2+}$  toxicity could be alleviated.

In the second experiment, Cu complexing ability of naturally occurring amines was evaluated and the effect of complex formation in nutrient solution on the Cu uptake by plants was studied. Among the amines examined, 1,3-diaminopropane (DAP) complexed 87% of the total Cu when  $1,000 \mu\text{M}$  DAP was contained in the  $10 \mu\text{M}$   $\text{CuCl}_2$  solution. The shoot Cu contents of the plants treated with the  $10 \mu\text{M}$   $\text{CuCl}_2$  solution. The shoot Cu contents of the plants treated with the  $10 \mu\text{M}$   $\text{CuCl}_2$  solution in the presens of  $1,000 \mu\text{M}$  DAP for 3 days were higher than those in the absence of DAP. The result suggested that the Cu-DAP chelates were also easily absorbed by the plants because of their positive charges, as shown in the case of Cu-Trien chelates.

### 緒 言

土壤溶液中のCuは90%以上が土壤有機物と結合して錯体の形態で存在しており<sup>1)</sup>, このような形態のCuが植物に対する供給源となっていると考えられる。また, 水耕栽培において水酸化物生成を避けるためFeをエチレンジアミン4酢酸〔 $(\text{HOOCCH}_2)_2\text{N}(\text{CH}_2)_2\text{N}(\text{CH}_2\text{COOH})_2$ , EDTA〕などとの錯体の形態で与えると, Fe-EDTA中のFeがCuとおきかわり, Cu-EDTAが生成することが知

られている<sup>2)</sup>。したがって、このようなCu錯体の植物による吸収機構について明らかにすることは重要な研究課題と思われる。

EDTAなどのアミノカルボン酸系の合成キレート試薬が共存する溶液からの植物による微量元素の吸収については比較的研究例は多く、Fe, Cd, Cu, などの場合、一般に植物によるこれらの元素の吸収量は、キレート試薬を共存させなかった場合に比べて著しく低下することが知られている<sup>3-5)</sup>。そして、このことについて、DEKOCKとMITCHELL<sup>6)</sup>は、-1価の負荷電または無荷電の錯体は植物によって吸収されるのに対して、-2価の負荷電を有する錯体は吸収されにくいことから、生成した錯体分子の荷電性が植物によって錯体分子が吸収され易いかどうかを左右する一つの要因であると推察した。一方、アミノカルボン酸系以外のキレート試薬を共存させた場合の植物による微量元素吸収量への影響についての報告例は少ないが、SMEULDERSら<sup>7, 8)</sup>は、アミン系のキレート試薬であるテトラエチレンペンタミン〔(NH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>NHCH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>NH, Tetren〕を共存させて水耕実験を行い、植物によるCu吸収量がTetrenを共存させなかった場合よりも増加することを報告した。アミン系のキレート試薬は、Cuと錯化した結果、正に荷電した錯体を生成すると考えられるが、このような正に荷電した錯体を生成する場合をも含めて錯体分子の荷電性の違いに着目し、植物による吸収形態を比較した例は見あたらなかった。そこで、著者ら<sup>9)</sup>は、Cuと錯化した結果、-2, 0, +2価に荷電し、いずれも構造の類似した平面型の錯体を生成する低分子合成キレート試薬として、EDTA, エチレンジアミン2酢酸〔HOOCCH<sub>2</sub>NH(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>NHCH<sub>2</sub>COOH, EDDA〕, トリエチレントトラミン〔NH<sub>2</sub>(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>NH(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>NH(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>NH<sub>2</sub>, Trien〕を供試し、2日間の水耕実験を行った。そして、EDTAまたはEDDAの共存下では植物によるCu吸収形態は、リガンドから解離して存在するCu<sup>2+</sup>イオンが大部分であるのに対し、Trienの共存下では、正に荷電したTrien分子が、リガンドから解離して存在するCu<sup>2+</sup>イオンよりも速やかに吸収移行されるという結果を得た。

このように、アミン系のキレート試薬を水耕液に共存させた場合には、これまで実験に多く用いられてきたEDTAなどのアミノカルボン酸系のキレート試薬の場合と異なり、植物によるCu吸収量が著しく増大するという特徴がある。上述の実験は、2日間という短期間の水耕実験であったため、より長時間にわたってTrienを水耕液中に共存させた場合の植物のCu吸収量やCu過剰症状発生の有無については未検討である。そこで、本報告では、キュウリを供試植物とし、TrienおよびCuを3週間にわたり投与した水耕実験の結果について報告する。

また近年では、大量の家畜糞堆肥や下水汚泥などが農用地に投入されていることから、このような有機質資材に存在すると思われるアミン類が植物によるCu吸収過程に影響を及ぼしている可能性もある。そこで、Trien, Tetrenなどの合成キレート試薬以外に、天然に存在するアミン類がCuを錯化する能力と植物のCu吸収に及ぼす効果についても検討を加えた。

## 材料および方法

### 実験1 Trien共存下での水耕実験

供試植物としてキュウリ幼植物を用いた。キュウリの種子をパーミキュライトに播種し、子葉展開終了時まで育苗したのち、10ℓ容のポリ容器1個につき10個体の植物を移植し、1/10濃度のHOAGLAND-ARNON水耕液を用いて水耕栽培を開始した。2週間後、a/5000ワグネルポットに1個体ずつ移植し、1/5濃度のHOAGLAND-ARNON水耕液でさらに1週間栽培を続け、本葉第2葉展開終了時の幼植物を以下の実験に供試した。

処理区として、1/5濃度のHOAGLAND-ARNON水耕液で栽培を続ける区(対照区)、この水耕液に

5  $\mu\text{M}$   $\text{CuCl}_2$ と5  $\mu\text{M}$  Trienを共存させた区(Trien区), および5  $\mu\text{M}$   $\text{CuCl}_2$ のみを共存させた区( $\text{CuCl}_2$ 区)の3つの区を設けた. それぞれの区に4個体(4ポット)の植物を供試して3週間処理を継続した. この間の水耕液交換は1週間ごとに行い, 水耕液交換時に, いずれの処理区のpHも,  $\text{NaOH}$ または $\text{HCl}$ を用いて6.0となるように調節した. なお,  $\text{Cu}^{2+}$ イオン選択性電極を用いて試験水耕液中の $\text{Cu}^{2+}$ イオン濃度を測定したところ, 対照区とTrien区の $\text{Cu}^{2+}$ イオン濃度は0.5  $\mu\text{M}$ 以下であった.

処理の終了した植物体は, 葉部, 茎部, 根部に分け, さらに葉部は4個体の植物から同じ葉位の葉を集め, 葉位別としてそれぞれ採取した. サンプルングした植物体は, 60°Cの恒温送風乾燥機で乾燥し各部位の乾燥重を測定した後, 粉碎して分析試料とした. 得られた分析試料は, 常法に従って硝酸/過塩素酸を用いて分解し, 各試料中のCu濃度を原子吸光度法で測定した.

## 実験2 アミン類のCu錯化能力の検討

天然に存在するアミン類として, 1, 3-ジアミノプロパン [ $\text{NH}_2(\text{CH}_2)_3\text{NH}_2$ , DAP], プトレシン [ $\text{NH}_2(\text{CH}_2)_4\text{NH}_2$ , Put], カダベリン [ $\text{NH}_2(\text{CH}_2)_5\text{NH}_2$ , Cad], およびスペルミン [ $\text{NH}_2(\text{CH}_2)_3\text{NH}(\text{CH}_2)_4\text{NH}(\text{CH}_2)_3\text{NH}_2$ , Spe]を供試した. また, 低分子合成キレート試薬であるTrienおよびEDTAも比較のために供試した. これらの試薬を, 0.5mM  $\text{CaCl}_2$ および0.1M  $\text{KCl}$ を共存させた10  $\mu\text{M}$   $\text{CuCl}_2$ 中に0, 10, 100, 1000  $\mu\text{M}$ となるように溶解し,  $\text{NaOH}$ または $\text{HCl}$ を用いてpH 6.0とした. これらの溶液中でリガンドから解離して存在する $\text{Cu}^{2+}$ イオン濃度を, 前報<sup>9)</sup>の方法に従って,  $\text{Cu}^{2+}$ イオン選択性電極によって測定した. なお, 測定条件のうち, 0.1N  $\text{KCl}$ は, イオン強度を一定に保つために添加した. また, 実験3の水耕試験では, 植物根の生理活性を保つためにCaを水耕液中に共存させることが必要である<sup>10)</sup>ため, このことを想定して0.5mM  $\text{CaCl}_2$ 共存下で $\text{Cu}^{2+}$ イオン濃度の測定を行った.

## 実験3 DAP共存下での水耕試験

実験2で供試した天然に存在するアミン類からDAP, 比較のために, Trien, EDTAを用い, 実験1と同様の方法で育苗したキュウリ幼植物を供試して短期間の水耕試験を行った. 処理区として, 0.5mM  $\text{CaCl}_2$ 水溶液に, 10  $\mu\text{M}$   $\text{CuCl}_2$ と1000  $\mu\text{M}$  DAPを共存させた区(DAP区), 10  $\mu\text{M}$   $\text{CuCl}_2$ と10  $\mu\text{M}$  Trienを共存させた区(Trien区), 10  $\mu\text{M}$   $\text{CuCl}_2$ と10  $\mu\text{M}$  EDTAを共存させた区(EDTA区), 10  $\mu\text{M}$   $\text{CuCl}_2$ のみを共存させた区( $\text{CuCl}_2$ 区)の4つの区を設け, 3日間処理を行った. 試験は, 1  $\ell$ 容ポットに1個体の植物体を移し, 各処理区に2ポット(2個体)を供試して行った. 処理の終了した植物体は, 地上部と根部に分けた後, 実験1と同様の方法で乾燥, 分解し, 原子吸光度法でCu含量の測定を行った.

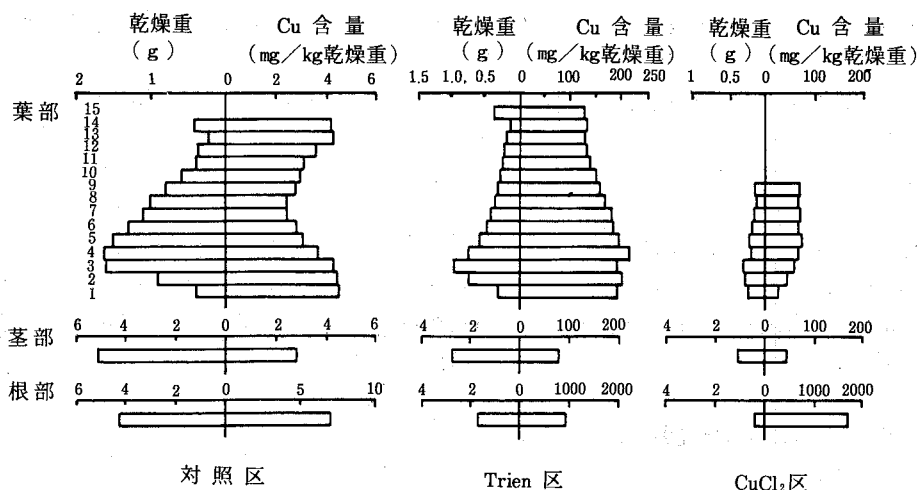
## 結果および考察

### 水耕液へのTrienの共存がキュウリの生育およびCu吸収に及ぼす影響

実験1の各処理区の植物体各部位の乾燥重およびCu含量を第1図に示した.

過剰のCuを投与していない対照区では, 処理終了までに本葉は第14葉まで展開し健全な生育を示した. 対照区の植物体のCu含量は, 地上部で3.16mg/kg, 根部で6.96mg/kgであった. また, 葉位別のCu含量をみると, 第1葉から第7葉にかけて減少し, その後第14葉にかけて高くなる傾向が認められた.

一方,  $\text{CuCl}_2$ 区では本葉は第9葉までしか展開せず, 葉脈間クロロシスが観察され, 各部位の乾



第1図 水耕液へのTrienの共存(3週間)がキュウリの生育および各部位のCu含量に及ぼす影響。各図の左側は乾燥重を、右側はCu含量を示す。葉部の数字は、植物体基部から先端部へ向かっての葉位を示す。

乾燥重も対照区よりも著しく小さい値となった。また、根の生育も著しく抑制された。この処理区の植物体の地上部Cu含量は、52.6mg/kg、根部Cu含量は1570mg/kgであった。また、葉位別にCu含量をみても、最も低い第1葉で28.1mg/kgであり、生長点に近い第9葉に向かって増大する傾向が認められた。キュウリ茎葉中の適正なCu含量は6~15mg/kgとされている<sup>11)</sup>ことから、この処理区では明らかにCu過剰による障害が発生したと考えられた。

これらの処理区に対して、Trien区では本葉は第15葉まで展開し、処理終了時における草丈は対照区とほぼ同じか、やや高くなった。さらに、根部、葉部、茎部、いずれの部位の乾燥重も、対照区よりはやや小さい値であったが、CuCl<sub>2</sub>区よりも顕著に大きな値であった。Trien区の本葉は、対照区のものと比較するとやや硬く、葉色も若干薄い傾向が認められ、縁ぐされや落下傘葉<sup>12)</sup>に似た症状も観察されたが、地上部の伸長に大きな影響は認められなかった。Trien区の地上部Cu含量は、147mg/kgという値が得られ、CuCl<sub>2</sub>区よりも著しく高いにもかかわらず、本葉にクロロシスは観察されなかった。葉位別のCu含量は、第1葉から第5葉が約200mg/kgで最も高く、第6葉から第15葉に向かって減少する傾向が認められ、対照区やCuCl<sub>2</sub>区の葉位別Cu含量と異なった分布傾向を示した。一方、Trien区の根部Cu含量は、975mg/kgで、CuCl<sub>2</sub>区よりも低い傾向が認められた。

以上のように、3週間にわたる栽培においても前報<sup>9)</sup>の短期間吸収実験と同様、正に荷電したCu錯体を生成すると考えられるTrienの共存によって、Cu過剰症状を伴わずに、植物体地上部のCu含量が著しく増大することが明らかとなった。このようなTrien区での地上部Cu含量の増大および対照区やCuCl<sub>2</sub>区とは異なる葉位別Cu含量の分布傾向は、Trien区では、CuがCu-Trien錯体の形態で吸収・移行されていることを示していると考えられる。また、Cu<sup>2+</sup>イオンは植物根細胞壁に非常に吸着されやすいことが知られている<sup>13)</sup>が、Cu-Trien錯体は、Cu<sup>2+</sup>イオンよりも根によって吸着されにくく、また、植物体内でも根から地上部へ移行されやすいため、根部Cu含量は、Trien区の方がCuCl<sub>2</sub>区よりも低くなったと考えられる。さらに、Trien区において、著しく高い葉部Cu含量にもかかわらず、CuCl<sub>2</sub>区で観察されたような生長への影響がみられず、クロロシスなどの症状が観察されなかったことは、吸収されたCu-Trien錯体が、その後も植物体内で錯体の形態で比較的安定に存在するためにCu<sup>2+</sup>イオン特有の過剰症状が認められなかったものと推察される。一方、

Trien区の葉部ではCu過剰症状とは異なる様々な症状が観察されたが、これは、植物体内でCu-Trien錯体から一部解離して存在するTrienが、Ca, Mg, Feなどの多量元素に対しても錯化力を示したために、これらの元素の生理活性が失われ、植物に欠乏症状が発生したのではないかと推察される。しかし、3週間にわたる水耕試験のため、Trien自体が植物に対する毒性を示した可能性もあり、この点については、Cu以外の元素の葉中含量の測定などを通じてさらに検討する必要があると思われる。

第1表 解離して存在するCu<sup>2+</sup>イオン濃度 (μM)

試薬	試薬濃度		
	10 μM	100 μM	1000 μM
1,3-ジアミノプロパン(DAP)	9.63	7.97	1.32
プトレシン(Put)	10.06	9.33	8.04
カダベリン(Cad)	9.33	9.96	9.56
スペルミン (Spe)	9.69	7.69	2.58
トリエチレンテトラミン (Trien)	0.81	<0.5	<0.5
エチレンジアミン 4 酢酸 (EDTA)	<0.5	<0.5	<0.5
なし	10.44	9.96	9.97

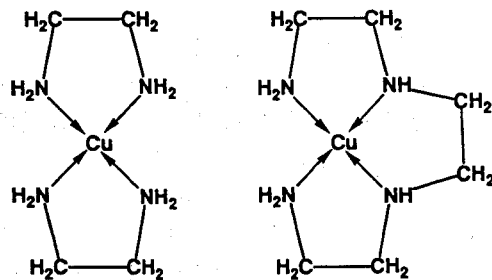
全Cu濃度10μM, 0.5mM CaCl<sub>2</sub>および0.1M KCl共存下, pH6.0で測定。

#### アミン類のCu錯化能力の検討と水耕液へのDAPの共存がキュウリによるCu吸収に及ぼす影響

実験2の結果を第1表に示した。

比較のために供試したTrien, EDTAでは、10μM CuCl<sub>2</sub>溶液に10μMの濃度の試薬を共存させることによってほとんどのCuが錯化された。これに対し、天然に存在するアミン類として供試した他の試薬の場合、10μM CuCl<sub>2</sub>溶液に10μMまたは100μMの濃度の試薬の共存では、Cuに対する錯化能力はほとんど観察されなかったが、1000μM共存下では、DAPで約87%、Speで約75%のCuが錯化された。しかし、Put, Cadでは1000μMの濃度の試薬を共存させてもCuに対する錯化能力はほとんど認められなかった。

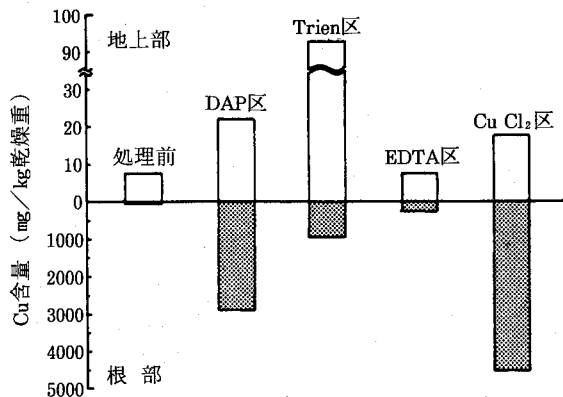
DAP, Put, Cadとよく似た構造の合成キレート試薬にエチレンジアミン〔NH<sub>2</sub>(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>NH<sub>2</sub>, ED〕がある。EDは、1原子のCuに対して2分子が配位することによって2つの5員環を形成し、平面型の錯体を生成する(第2図)。DAP, Put, Cadの場合もEDの場合と同様、1原子のCuに対して2分子が配位し、それぞれ2つの6, 7, 8員環を形成することによって平面型の錯体が生成するものと推察される。しかし、キレート化合物の安定度を支配する大きな要素は、キレート環の大きさおよびひずみ



第2図 エチレンジアミン銅 (Cu-ED) 錯体(左側) およびトリエチレンテトラミン銅 (Cu-Trien) 錯体(右側)の構造式。

であり、5員環、6員環を形成するときが最も安定であることが知られている<sup>14)</sup>。したがって、EDに最も近い構造式を持ちCuと錯化した結果、2つの6員環を形成すると考えられるCu-DAP錯体は安定であるのに対し、7員環、8員環を形成すると考えられるCu-Put、CuCad錯体は不安定であるため、 $10\mu\text{M}$   $\text{CuCl}_2$ 溶液に $1000\mu\text{M}$ の濃度の試薬を共存させてもCuに対する錯化する能力が認められなかったものと考えられる。一方、Trienは1分子内の4つのアミノ基が1原子のCuと配位結合することによって3つの5員環を形成し、平面型の錯体が生成する(第2図)。Speは、このTrienとよく似た構造をしており、1分子内の4つのアミノ基が1原子のCuと配位結合し、2つの6員環と1つの7員環を形成して、平面型のCu-Spe錯体を生成すると推察される。Trienでは、 $10\mu\text{M}$   $\text{CuCl}_2$ 溶液に $10\mu\text{M}$ の濃度の試薬の共存でほとんどのCuが錯化されたが、Speでは、 $1000\mu\text{M}$ 共存下で約75%のCuが錯化されるにとどまった。このことは、Cu-Spe錯体では7員環構造が含まれCu-Trien錯体より不安定であるためと推察される。

このように、Trien、EDTAなどの合成キレート試薬と比較すると錯化能力は小さいものの、天然に存在するアミン類の中にも、Cuより過剰の濃度で存在するとCu錯体を生成するものが存在することが明らかとなった。そこで、実験2に供試したアミン類のうち、Cuに対する錯化能力を示したDAPを用いて3日間の水耕実験を行い(実験3)、その結果を第3図に示した。



第3図 水耕液へのDAPの共存(3日間)がキュウリ地上部および根部のCu含量に及ぼす影響。  
上側は地上部Cu含量、下側は根部Cu含量を示す。

根部Cu含量は、いずれの試薬を共存させた場合でも $\text{CuCl}_2$ 区より低下し、DAP区、Trien区、EDTA区の順に低くなった。一方、地上部Cu含量は、前報<sup>9)</sup>と同様、Trien区では $\text{CuCl}_2$ 区よりも著しく高くなり、EDTA区では逆に $\text{CuCl}_2$ 区よりも高くなる結果が得られた。また、DAP区では、Trien区ほど顕著ではないものの、 $\text{CuCl}_2$ 区よりも高くなる傾向が認められた。このように、DAPを共存させた場合、 $\text{CuCl}_2$ 区と比較して地上部Cu含量は高く、根部Cu含量は低くなり、Trienを共存させた場合と同様の傾向が認められた。この結果は、Cu-DAP錯体も正に荷電しているためにCu-Trien錯体の場合と同様、 $\text{Cu}^{2+}$ イオンよりも容易に根によって吸収され、植物体内でも根部から地上部へ移行しやすかったためと推察される。なお、短期間の吸収実験であるため、いずれの処理区でも植物体にCuやアミン類による過剰症状は認められなかった。

近年、農耕地に大量に投入されている家畜糞堆肥や汚泥肥料中には、高濃度のCuが含まれている場合のあることが指摘されている<sup>15)</sup>。今回の実験結果は、これらの有機質資材に高濃度のアミン類が含まれていた場合、アミン類がCuと錯体を形成し、 $\text{Cu}^{2+}$ イオンよりも植物によって吸収されやすい形態にCuの存在状態が変化している可能性を示唆している。この点については、環境保全の観点からもより詳細な検討が必要と思われる。

## 要 約

(1) アミン系のキレート試薬であるトリエチレントトラミン (Trien) を水耕液に共存させた場合

の植物の生育およびCu吸収への影響を検討するために、キュウリを供試植物として3週間の水耕試験を行った。5  $\mu$  M CuCl<sub>2</sub>を含むHOAGLAND-ARNON水耕液で栽培した植物体には、Cu過剰による明らかなクロロシスが認められ、生育が顕著に悪化した。これに対し、5  $\mu$  M CuCl<sub>2</sub>と5  $\mu$  M Trienを共存させた場合、地上部Cu含量は、水耕液に5  $\mu$  M CuCl<sub>2</sub>のみを共存させた場合よりも著しく高くなるにもかかわらず、Cu過剰による生育低下は認められなかった。この結果は、水耕液中で生成する正に荷電したCu-Trien錯体が、Cu<sup>2+</sup>イオンよりも容易に根によって吸収され、植物体内でも錯体の形態で長期間にわたって安定に存在することを示していると考えられた。

(2) 天然に存在するアミン類として1,3-ジアミノプロパン (DAP), プトレシン (Put), カダベリン (Cad), スペルミン (Spe) を供試してこれらのアミン類のCu錯化能力をCu<sup>2+</sup>イオン選択性電極を用いて検討した。その結果、10  $\mu$  M CuCl<sub>2</sub>溶液に対して1000  $\mu$  Mの濃度の試薬を共存させることにより、DAPで約87%, Speで約75%のCuを錯化する能力があることが示された。

(3) 天然に存在するキレート能のあるアミンとしてDAPを供試し、DAPの共存がキュウリによるCu吸収に及ぼす影響について、3日間の水耕試験を行った。10  $\mu$  M CuCl<sub>2</sub>水溶液に1000  $\mu$  Mの濃度のDAPを共存させた処理区では、DAPを共存させなかった区よりも、地上部Cu含量は高くなり、根部Cu含量は低くなる結果が得られ、Trienを共存させた場合と同様の傾向であった。したがって、DAPを共存させた場合にも、Cu-Trien錯体と同様、正に荷電していると考えられるCu-DAP錯体のほうが、Cu<sup>2+</sup>イオンよりも根によって吸収されやすいと推察された。

キーワード：アミン, Cu, 錯体, 養分吸収。

## 文 献

- 1) LONERAGAN, J. F.: The availability and absorption of trace element in soil-plant system and their relation to movement and concentration of trace element in plant. In "Trace Element in Soil-Plant-Animal System" ed. by NICOLAS D. J. D., p. 109-134, Academic Press, New York (1975).
- 2) HALVORSON, A. D. and LINDSAY, W. L.: Equilibrium relationships of metal chelates in hydroponic solutions. *Soil Sci. Soc. Am. Proc.*, **36**, 775-761 (1972).
- 3) HARRISON, S. J., LEPP, N. W. and PHIPPS, D. A.: Uptake of copper by excised roots. IV. Copper uptake from complexed sources. *Z. Pflanzenphysiol.*, **113**, 445-450 (1984).
- 4) GREGAR, M. and LINDBERG, S.: Effect of Cd<sup>2+</sup> and EDTA on young sugar beets (*Beta vulgaris*). I. Cd<sup>2+</sup> uptake and sugar accumulation. *Physiol. Plant.*, **66**, 69-74 (1986).
- 5) 岩崎貢三・西村和雄・高橋英一：合成キレート銅水溶液からの植物の銅吸収, 土肥誌, **58**, 193-198 (1987).
- 6) DEKOCK, P. C. and MITCHELL, R. L.: Uptake of chelated metals by plants. *Soil Sci.*, **84**, 55-62 (1957).
- 7) SMEULDERS, F., SINNAEVE, J. and CREMERS, A.: *In situ* immobilization of heavy metals with tetraethylenepentamine (tetren) in natural soils and its effect on toxicity and plant growth. II. Effect of complex formation with tetren on copper and zinc uptake in corn from nutrient solutions. *Plant Soil*, **70**, 49-57 (1983).
- 8) SMEULDERS, F., SINNAEVE, J. and CREMERS, A.: *In situ* immobilization of heavy metals with tetraethylenepentamine (tetren) in natural soils and its effect on toxicity and plant growth.

- III. Uptake and mobility of copper and its tetren-complex in corn plants. *Plant Soil*, 70, 59-61 (1983).
- 9) IWASAKI, K. and TAKAHASHI, E.: Effect of charge characteristics of Cu-chelates on the Cu uptake from the solution by Italian ryegrass and red clover. *Soil Sci. Plant Nutr.*, 35, 145-150 (1989).
- 10) EPSTEIN, E.: The essential role of calcium in selective cation transport by plant cells. *Plant Physiol.*, 36, 437-444 (1961).
- 11) 高橋英一・吉野 実・前田正男：作物の要素欠乏過剰症, 241 pp., 農山漁村文化協会, 東京(1980).
- 12) 加藤 徹：施設野菜の生育障害, 57-62 pp., 博友社, 東京(1986).
- 13) IWASAKI, K., SAKURAI, K. and TAKAHASHI, E: Copper binding by the root cell walls of Italian ryegrass and red clover. *Soil Sci. Plant Nutr.*, 36, 431-439 (1990).
- 14) 上野景平：キレート滴定法, 25 pp., 南江堂, 東京(1957).
- 15) 安西徹郎・松本直治：豚尿の10年連用が深さ別の水田土壌の理化学性および重金属含量に及ぼす影響, 土肥誌, 68, 433-439(1987).

(平成4年9月30日受理)

(平成4年12月28日発行)