

# 2018年国家技术进步奖提名项目公示

## 一、项目名称

同位素丰度计量溯源及原子量国际新标准

## 二、提名者及提名意见

提名者：国家质量监督检验检疫总局

提名意见：原子量是一切化学测量的源头和基准，对多学科发展具有基础推动作用。该项目针对部分元素原子量测量的国际研究瓶颈及同位素丰度计量基标准的严重缺失，长期开展测量机理方法研究和应用验证，取得了一系列重要创新成果：首次揭示了同位素质量歧视效应非线性变化规律，创新提出同位素质量和离子浓度双因子校正模型，建立了同位素丰度精准测量方法体系，在此基础上完成硒、镱、钼、钆、氯 5 种元素同位素丰度和原子量测量，不确定度降低 1~2 个数量级，被 IUPAC 评为国际最佳测量和新标准；建立超浓缩硅同位素无干扰制备和测量技术，满足了国际单位摩尔重新定义中对硅原子量测量的高精准要求。创新研制同位素国家标准物质 62 种，填补国内外空白，建立了《同位素丰度测量基准方法》等 9 项国家标准、国家计量技术规范和社会公用计量标准；参加 12 项国际比对均取得国际等效一致，38 项测量与校准能力获得国际互认。获授权发明专利 4 项，编写专著 2 部，发表论文 45 篇，其中 SCI/EI 收录 25 篇。

项目成果产生显著社会效益，在化学基础科学研究和国际单位制重新定义重大国际科技活动中充分体现了我国同位素测量技术创新能力；通过建立的同位素计量溯源标准和分析技术的推广应用，为多个行业领域相关研究发展提供了坚实的计量基础支撑。

经审查，本项目推荐材料真实有效。鉴于以上所述，提名该项目参评国家科技进步奖二等奖。

## 三、项目简介

原子量是描述和认识物质世界的基础，是多个学科前沿发展的基础，在质量和摩尔国际单位重新定义、地球科学、生命科学、宇宙形成及演化等科学前沿研究领域发挥着重要基础作用。本项目针对部分原子量因其同位素分析困难而止步不前的国际研究瓶颈，以及同位素国家计量基(标)准严重缺失，长期系统开展测量新技术研究和多领域应用，突破同位素精准测量关键技术，创建了同位素丰度精准测量新方法，修正了钆、硒、镱、钼、氯 5 种元素原子量及同位素丰度国际

标准值，建立了同位素丰度国家计量基(标)准溯源体系。项目共获专利 4 项，研制国家标准物质 62 种，编写专著 2 部，发表论文 45 篇，其中 SCI /EI 收录 25 篇。主要创新成果如下：

1、建立高精度测量新方法体系，修正了 5 种元素原子量及同位素丰度国际标准。首次揭示了同位素丰度质量歧视效应非线性变化规律，提出了同位素质量-浓度双因子校正模型；建立了浓缩同位素样品纯化和全蒸发绝对测量新方法，先后完成了钹、硒、镱、钼、氯 5 种元素同位素丰度及原子量准确测量，测量不确定度降低 10-33 倍，被国际同位素丰度和原子量权威发布机构（IUPAC）采纳为国际新标准和最佳测量。

2、首次实现 99.998%超浓缩硅同位素比精准测量，为摩尔重新定义做出重要贡献。2018 年，化学测量唯一国际基本单位摩尔(mol)将使用阿伏加德罗常数定义，超浓缩同位素硅原子量是阿伏加德罗常数复现必须关键数据。研究建立了超浓缩硅同位素离子无干扰制备和同位素比值精准测量，标准不确定度达  $2 \times 10^{-9}$ ，在 8 个先进国家计量院参加的国际比对中结果最优，满足了摩尔重新定义对硅原子量高精度测量要求。

3、创新研制同位素分析国家标准 71 项，建立同位素丰度建立基标准溯源体系。建立同位素测量不确定度评定模型，创新研制同位素国家一级标准物质 54 种，质谱仪校准用标准物质 8 种，填补国内外空白；建立《同位素丰度测量基准方法》等 9 项国家计量技术规范、国家标准和社会公用计量标准；首次建立了基于硫、铁同位素稀释质谱基准方法原位定量蛋白质溯源技术；参加的 12 项国际关键比对全部取得国际等效，38 项同位素测量与校准能力获得国际互认。

项目成果产生了显著的社会效益，在化学基础科学研究和国际单位制重新定义重大国际科技活动中做出了中国贡献，中国首次进入国际同位素标准物质来源行列，大幅提升了我国的国际地位。研究团队被国际同位素与原子量委员会（CIAAW）评价“是同位素测量领域最优秀的团队之一，为同位素科学界做出了重要贡献”。通过计量基标准和测量技术的推广应用，为地质、地球化学、环境科学、生命科学等重要领域测量溯源和研究发展提供了坚实保障。

## 四、客观评价

### 4.1 研究成果的国际公认度和影响力

#### (1) 研究成果被采纳为新的国际标准

测量的钹、硒、氯、镱和钼元素原子量及其同位素丰度值先后于 2005 年、2013 年、2015 年和 2017 年被 IUPAC 采纳为新的国际标准和最佳测量，研制的硒、镱同位素标准物质被推荐为国际同位素标准物质，2014 年中国计量科学研究院被 IUPAC CIAAW 列为十二个国际同位素标准物质来源之一。

## (2) 测量与校准能力获得国际互认

先后 12 次参加同位素测量和同位素稀释质谱方法的国际比对，比对结果均取得了国际等效一致性。经严格的多轮国际同行评审，38 项同位素测量与校准能力及标准物质获得了国际互认（BIPM 网站公布）。

## (3) 国际同行对研究成果的评价

2013 年时任 IUPAC CIAAW 主席 Brand 博士评价硒原子量测量研究“是硒原子量测量的重大突破。。。祝贺团队取得的非凡成就”；IUPAC CIAAW 高度评价“王军研究团队是同位素测量领域最优秀的团队之一。。。为同位素科学界做出重要贡献”。美国化学会 Chemical & Engineering 针对镱元素原子量的改写做了题为“Ytterbium Gets a New Atomic Weight”的研究亮点报道。

Int.J.Mass Spectrom.2010,31(4):193-201 资深审稿人评价“这是一篇很优秀的原子量测量论文，硒原子量急需被重新测量。必须对作者完成的工作表示祝贺，此项工作很困难……”。Geostandards and Geoanalytical Research 2015,40(2):227-238 审稿人针对硒同位素标准物质研制指出“此项工作是科学界急需并很受欢迎的……”。Analytical Chemistry 2012,84:10350-10358 资深审稿人评价“本研究获得了高质量的绝对氯原子量测定数据。” Analytical Chemistry 2017,89(17):9031-9038 两位专业审稿人分别指出：“这项工作具有非常高的价值，是测定多同位素元素丰度的研究中获得最广泛成就的研究工作之一”，“这项工作对现有技术突出的贡献是采用了钼元素的全部浓缩同位素制备校正样品，……”。

## 4.2 科技查新

完成人先后委托中国科学技术信息研究所、中国化工信息中心、COMAR 信息库和国家标准物质信息服务平台等对建立的硒、镱、钼、硅等元素同位素丰度基准测量方法、研制的标准物质等进行了科技查新。结论（节选）：（1）……，经检索，目前在所查国内外文献中，上述工作未见与之相同报道，具有新颖性。

（2）无硒、镱、钼、镱同位素丰度（比）标准物质，无铁、锌等浓缩同位素稀释剂标准物质。

## 4.3 国内专家对研究成果的评价

科技支撑计划课题“同位素丰度基准的研究”验收意见（节选）：“完成人首次在宽泛的锌、钪、硒、镱四种元素的同位素比值变化范围内，研究了 MC-ICP-MS 质量歧视效应变化规律，发现同一对同位素比值随着比值的改变，质谱仪质量偏倚校正系数并非成线性变化，比值差异越大，变化越明显。首次建立了锌、钪、镱、镱全蒸发热电离质谱测量技术，……锌、钪、镱、硒、镱主同位素丰度比测量值的不确定度（0.01%~0.05%），具有国际领先或先进水平……”

科技支撑计划课题“同位素高准确度测量溯源技术研究”验收意见(节选):  
“首次研究建立了 HR-ICP-MS 准确测量高浓缩硅同位素的方法,解决了硅氢等严重质谱干扰影响,为硅球法复现阿伏加德罗常数提供了一种新的有效的测量技术;建立了基于全校正机制的钼、镁同位素 MC-ICP-MS 基准测量方法,……建立分段式校正模式,提高了同位素比值测量结果正确度。……”

#### 4.4 获奖情况

“钼同位素组成的绝对测量和钼原子量国际新标准”和“同位素基准测量方法建立及计量标准研究”分别获得 2007 年、2015 年国家质量监督检验检疫总局科技兴检一等奖。

## 五、推广应用情况

### 5.1 推广应用情况

项目研究成果已在国家计量基础性研究和量值传递、多个重点领域的科研和检测工作中得到广泛的应用:

(1) 钼、硒、氯、镱、钼原子量和同位素丰度数据作为有效的国际新标准值,由 IUPAC、CIAAW 向全球发布使用。

(2) 建立的方法应用于国际比 CCQM-K75、CCQM-K100、CCQM-P48、CCQM-K98、CCQM-K49、CCQM-P160 等 12 项基体样品中铂、铜、铀、铅、镉等同位素及含量测量,均取得等效一致的成绩;38 项同位素测量与校准能力获得国际互认。

(3) 项目完成人作为主编和部分章节撰稿人编写了质谱技术丛书《无机质谱概论》(2006 年出版)、“十三五国家重点图书”分析化学手册(第三版)《无机质谱分析》(2016 年出版),为质谱和同位素分析测量工作提供了理论和技术指导。

(4) 长期协助中国疾病预防控制中心营养与健康所,利用同位素人体示踪技术开展我国重点人群微量元素生物利用研究,先后为对方准确分析了六千多份人体同位素示踪生物样品,提供了大量有效的同位素基础数据。

(5) 先后与中科院、地质大学、农科院等科研院所和高校联合开展地下水、土壤、农作物等样品中同位素示踪和测量研究,并共同发表 SCI 收录论文多篇。

(6) 为社会提供同位素测量技术服务和相关计量标准量传技术服务。近年来测量和出具了两百多份硒、锌、硼、锶等同位素组成分析测试报告和质谱仪校准证书,研制的多种标准物质提供给社会多个行业领域使用,保障测量量值溯源传递。

## 5.2 社会效益

项目研究成果已产生显著社会效益和重要影响力，原子量测量从基础科学研究方面标志着国家的综合科技水平，以该技术为支撑的原子量新标准值测定的国际竞争，集中体现了技术创新和国家计量研究综合实力。钹、硒、氯、镱、钼原子量和同位素丰度数据作为新国际标准值向全球公布，阿伏加德罗常数复现的硅摩尔质量国际比对中取得优异成绩，在化学基础科学研究和国际单位制重新定义重大国际科技活动中做出了中国计量的实质性贡献。

项目构建了同位素计量基标准溯源体系，填补了国内外硒、镱等同位素丰度基标准空白，扩展了测量与校准国际互认能力，中国计量院被列入国际同位素标准物质来源行列，进一步提升了我们的国际地位和话语权，为逐步摆脱同位素标准依赖国外的被动状况创造了条件。同时，原子量和同位素标准为化学成分量测量溯源体系的建立与完善提供了溯源源头资源保障。通过形成的计量溯源标准体系向地质、环境、营养健康、检验检疫等行业领域进行技术辐射和提供量传服务，为解决重点领域的科学前沿难题，促进同位素化学、质谱分析等学科及多领域科技的发展提供了坚实的计量技术支撑。

## 六、主要知识产权证明目录

- [1] 中国发明专利，一种高纯三氧化钼的制备方法，ZL 201410234166.X，2015.06.17，中国计量科学研究院（宋盼淑，王军，任同祥，周涛），有效；
- [2] 其它，硒、锌、钷、镱、钹同位素比溶液标准物质，[2012]标准物质证字第 1240 号、[2013]标准物质证字第 1324 号、国制标物 10000723、[2014]标准物质证字第 1405 号、国制标物 10000802，2012-06-06/2013-05-28/2014-05-05，中国计量科学研究院（王军，任同祥，逯海，周涛），有效；
- [3] 其它，同位素稀释质谱基准方法/同位素丰度测量基准方法，2010-11-05/2015-01-30，中国计量科学研究院（王军，赵墨田，逯海，任同祥），有效；
- [4] 中国发明专利，一种人血清蛋白无机质谱联用技术的绝对定量方法，ZL201410031739.9，2015.07.08，中国计量科学研究院（冯流星，张丹，王军），有效；
- [5] 中国发明专利，一种血清蛋白质电泳后同位素稀释质谱定量方法，ZL201410098779.5，2016.11.23，中国计量科学研究院（冯流星，张丹，王军），有效；
- [6] 中国发明专利，一种用于激光剥蚀-同位素稀释质谱法的气溶胶混合装置，ZL201420406351.8，2014.07.22，中国计量科学研究院（冯流星，王军），有效；

[7] 其它, 镉-111、铅-207、汞-202、铁-54、铜-65、锌-67 浓缩同位素稀释剂, 国制标物 10000928/10001258, 2014-09-22/2013-05-28, 中国计量科学研究院(王军, 逯海, 周涛), 有效;

[8]其它, 四极杆电感耦合等离子体质谱仪性能的测定方法, 2017.11.1, 中国计量科学研究院(逯海, 王军, 戴新华, 韦超, 冯先进, 余兴, 贺茂勇), 有效;

[9]其它, 热电离同位素质谱计校准规范/稳定同位素气体质谱仪校准规范/四极杆电感耦合等离子体质谱仪校准规范, 2004-06-04/2006-12-08, 中国计量科学研究院(王军, 赵墨田, 逯海, 周涛, 方向), 有效;

[10]其它, 四极杆电感耦合等离子体质谱仪校准装置/表面热电离同位素质谱仪校准装置/稳定同位素气体质谱仪校准装置, 2013-04-01, 中国计量科学研究院(王军, 逯海), 有效。

## 七、主要完成人情况

王军, 排名第一, 研究室主任, 研究员, 中国计量科学研究院化学所。

**对本项目贡献:** 2 项支撑计划课题负责人; 负责研究解决同位素丰度和原子量测量、计量标准建立中的关键问题, 提出技术创新思路; 制定同位素丰度测量基准方法等技术规范 5 项, 建立社会公用计量标准 3 项, 负责研制多种同位素标准物质, 指导 2 名博士后以优异成绩出站。对科技创新 1-3 均有突出贡献, 该项研究的工作量占本人工作量 80%。

任同祥, 排名第二, 无行政职务, 副研究员, 中国计量科学研究院化学所。

**对本项目贡献:** 负责研究建立硒、镉、镱同位素 MC-ICP-MS 测量方法和浓缩硅 HR-ICP-MS 测量方法, 研究建立微量浓缩硒、镱同位素试剂的纯化方法, 硒、镉、镱、硅校正样品的制备, 同位素标准物质研制, 测量硒、镱原子量和浓缩硅以及超浓缩硅摩尔质量, 参加制定同位素丰度测量基准方法技术规范; 对科技创新 1-3 均有突出贡献, 该项研究的工作量占本人工作量 80%。

逯海, 排名第三, 无行政职务, 副研究员, 中国计量科学研究院化学所。

**对本项目贡献:** 系统研究了锌同位素质谱分析中的质量歧视效应, 创建了浓缩同位素组成全蒸发-热电离同位素质谱分析方法, 并成功应用于锌、镉、镱同位素标准物质研制和原子量测量, 负责制定国家标准 1 项, 研制了多种同位素和稀释剂标准物质, 对科技创新 1-3 均有突出贡献, 该项研究工作量占本人工作量 80%。

周涛, 排名第四, 无行政职务, 研究员, 中国计量科学研究院化学所。

**对本项目贡献:** 负责钷原子量、钷同位素丰度绝对测量与全蒸发测量方法的

研究，建立了钷、钷同位素丰度绝对质谱测量方法，负责建立高纯物质的纯度分析方法，研制了钷等同位素标准物质。对科技创新点 1-3 均有突出贡献，该项研究工作量占本人工作量 80%。

**赵墨田**，排名第五，无行政职务，研究员，中国计量科学研究院化学所。

**对本项目贡献：**负责钷同位素丰度及原子量测量研究工作，制定研究方案、技术路线，研制了钷、钷同位素标准物质，作为主编编著出版专著 2 部；对科技创新点 1、3 有突出贡献，该项研究的工作量占本人工作量的 70%。

**冯流星**，排名第六，无行政职位，副研究员，中国计量科学研究院化学所。

**对本项目贡献：**系统研究同位素稀释质谱方法，建立了基于硫、铁同位素稀释质谱法的蛋白质定量溯源技术，研制了硫同位素标准物质，实现了以元素测量为途径的典型生物样品中蛋白质的高准确度测量方法，获授权发明专利 3 项。对科技创新 3 有突出贡献；该项研究的工作量占本人工作量 70%。

**魏海珍**，排名第七，无行政职位，教授，南京大学地球科学与工程学院。

**对本项目贡献：**负责系统研究了高精度校正质谱法绝对氯原子量和同位素组成，设计了消除蒸发引入称量误差特殊称量装置，深入研究电离理论优化 Cs<sub>2</sub>Cl<sup>+</sup>-TIMS 方法的测定条件，获得了国际通用的三种氯同位素标准物质的绝对氯同位素组成和原子量，不确定度较以往报道降低 2 个数量级。对科技创新 1 有突出贡献；该项研究的工作量占本人工作量 60%。

**宋盼淑**，排名第八，无行政职位，副研究员，中国计量科学研究院化学所。

**对本项目贡献：**在国际上首次采用钼元素的全部七种浓缩同位素试剂，建立了基于全校正的钼同位素高准确度质谱测定方法，实现了钼同位素丰度的绝对测量，对六种来自不同国家、地域的天然丰度钼元素样品进行测定，研发微量浓缩钼同位素纯化技术，获得发明专利 1 项，参加完成相关国际比对。对科技创新 1、3 均有重要贡献，该项研究工作量占本人工作量 90%。

**巢静波**，排名第九，无行政职位，副研究员，中国计量科学研究院化学所。

**对本项目贡献：**深入研究同位素稀释质谱测量技术，负责完成 CCQM-K124、CCQM-K107 国际比对，比对结果等效一致。应用建立的计量标准为社会提供检测和校准技术服务。对科技创新 3 有重要贡献，该项研究工作量占本人工作量 50%。

**吴冰**，排名第十，无行政职位，高级工程师，中国计量科学研究院化学所。

**对本项目贡献：**负责采用高精密恒电流库仑基准方法对氯原子量测量中的氯同位素原料进行纯度定值，参与样品的高准确度称量和溶液制备；参加 4 种不同基体 69 个元素混合溶液标准物质研制工作，对科技创新 1、3 均有重要贡献，该

项研究工作量占本人工作量 50%。

## 八、主要完成单位及创新推广贡献

中国计量科学研究院，排名第一。

**对本项目贡献：**承担完成了项目中 4 个课题的研究工作，对本项目科技创新和推广应用情况的贡献如下：

1、首次揭示了同位素丰度质量歧视效应非线性变化规律，创新提出了同位素丰度测量的质量-浓度双因子校正模型；建立浓缩同位素样品全蒸发绝对测量新方法，基于上述科学发现和技术创新，建立了同位素丰度精准测量新方法体系；负责完成钹、硒、镱、钼元素同位素丰度及原子量准确测量，被 IUPAC 采纳为国际新标准和最佳测量。

2、首次创建超浓缩硅同位素离子无干扰制备和同位素比值精准分析测量技术，满足了摩尔单位制重新定义对硅原子量的高精准测量要求。

3、创新研制同位素国家标准物质 62 种，建立 9 项国家标准、国家计量技术规范和社会公用计量标准；38 项测量与校准能力获得国际互认，构建了国家同位素丰度计量基标准溯源体系。获授权发明专利 4 项，编写专著 2 部，发表论文 44 篇，其中 SCI/EI 收录 24 篇。

4、通过建立同位素计量溯源基标准和测量技术的推广应用，为地质、地球化学、环境科学、生命科学等重要领域测量溯源和科技进步提供了坚实的计量基础支撑。

南京大学，排名第二。

**对本项目贡献：**负责该项成果支撑项目（国家自然科学基金，校正质谱法测定氯同位素丰度和绝对氯原子量，No. 41073002, 2011.01.01-2013.12.31）的管理和实施。南京大学魏海珍课题组联合中国计量科学院、中国科学院等单位完成校正质谱法绝对氯原子量和同位素组成标定。长期深入开展无机同位素质谱电离理论和稳定同位素组成高精度测量方法的技术创新；测量的绝对氯原子量得到 IUPAC 原子量和同位素丰度委员会的认可，并在国际上首次给出了由海水制备具有地球化学研究意义的国际标准的绝对氯同位素比值，在绝对原子量和同位素组成高精密度测定研究取得重要突破。

## 九、完成人合作关系说明

自 2004 年起，项目完成人在国家自然科学基金项目、国家科技支撑计划和国家质检总局科技项目的支持下，共同开展了元素原子量国际新标准建立及同位素丰度计量基标准溯源体系研究。



第一完成人王军主持开展了“十一五”科技支撑课题“同位素丰度基准的研究”(2006BAF06B07);“十二五”科技支撑课题“同位素高准确度测量溯源技术研究”(2013BAK10B04)等项目,任同祥、逯海、周涛作为主要技术骨干参加了上述项目研究工作;宋盼淑于2013年7月至2015年7月在王军课题组开展博士后研究工作,出站后转正留在课题组继续开展相关研究工作;冯流星、巢静波、吴冰参与了项目的后续应用研究、关键技术国际比对和计量标准推广应用等。

第五完成人赵墨田主持开展了国家自然科学基金项目“高分辨多接收电感耦合等离子体质谱同位素丰度绝对测量法研究及其应用探索”(20375009),王军、逯海、周涛作为主要技术骨干参加了该项目研究工作,共同署名发表论文多篇。

第六完成人冯流星主持开展了国家质检总局公益性行业科研专项“高分辨电感耦合等离子体质谱联用技术在含硫蛋白质定量中的溯源性研究”(201110008),王军、逯海、任同祥作为主要技术骨干参加了该项目研究工作,共同署名发表相关论文多篇,获得发明专利3项。

第七完成人魏海珍主持开展了国家自然科学基金项目“校正质谱法测定氯同位素丰度和绝对氯原子量”(41073002),期间就测量方案、样品制备等关键技术与王军、逯海、吴冰开展合作研究,在中国计量院完成了系列氯样品的精密称量、制备和纯度分析工作,并联合署名发表论文。

基于上述共同完成的研究工作,经协商,上述完成人同意与中国计量科学研究院共同申报国家科学技术进步奖;并承诺提供的相关材料、数据和结果的真实性。