


一个移动式机器人的化学家


<https://doi.org/10.1038/s41586-020-2442-2>

收到日期：2019年11月1日

接受日期：2020年3月25日

在线发布时间：2020年7月8日

 检查是否更新

本杰明汉堡¹，菲利普·M. 杂音¹，弗拉基米尔五世。古素¹，凯瑟琳·M. 苦石¹，杨白¹，王晓燕¹，晓波李安¹，本：M. 阿尔顿¹，布依族李安¹，罗伯·小丑1号，妮古拉·兰金1号，布兰登·哈里斯¹，赖纳·塞巴斯蒂安·斯普里克¹ & Andrew 一世。库柏公司¹ 

电池、生物材料和异质催化剂等技术具有由分子和中量成分的混合物所定义的功能。到目前为止，这种多长尺度的复杂性还不能被原子模拟完全捕获，而且从第一性原理中设计这种材料仍然很罕见¹⁻⁵。

同样地，实验复杂性随着变量的数量呈指数级，将大多数搜索限制在材料空间的狭窄区域内。机器人可以协助进行实验搜索⁶⁻¹⁴但由于样品类型、操作、仪器和测量要求的多样性，它们在材料研究中的广泛采用具有挑战性。在这里，我们使用一个移动机器人来寻找改进的从水制氢的光催化剂¹⁵。该机器人在8天的时间里自主操作，在分组贝叶斯搜索算法的驱动下，在一个10个变量的实验空间内进行了688个实验¹⁶⁻¹⁸。这种自主搜索发现了比初始配方活性高出六倍的光催化剂混合物，选择有益成分，取消选择负成分。我们的策略使用了一个灵巧的方法^{19,20}自由漫游的机器人²¹⁻²⁴，使研究人员自动化，而不是使仪器自动化。这种模块化的方法可以部署在传统的实验室中，以解决光催化以外的一系列研究问题。

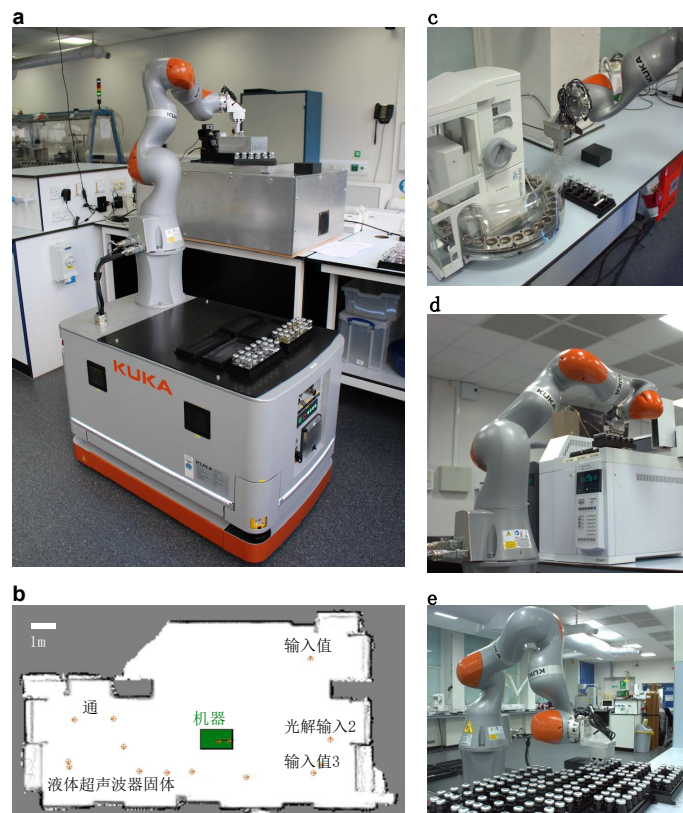
移动机器人平台如图所示。1a和扩展数据图。1. 它可以在实验室中自由移动，并使用激光扫描和触摸反馈来定位精细定位（方法和补充视频1）。这使得在尺寸为7.3m×11m的标准实验室环境中，(x, y)的定位精度为±0.12mm，定位精度为0±0.005°（图。1b. 扩展数据图。2、附图。1-10）。这种精度允许机器人在实验室的各个站点进行灵巧的操作。1. 扩展数据图。3）可与人类研究人员操作相媲美，如处理样品瓶和操作仪器。这个机器人具有类似人的尺寸和到达距离。因此，它可以在一个传统的、未经修改的实验室中工作。与许多只能分配液体的自动化系统不同，该机器人以高精度和可重复性分配不溶性固体和液体溶液，扩大了其在材料研究中的效用。在给电池充电所需的时间内，这个机器人可以每天运行21.6小时的最佳调度。该机器人使用激光扫描和触摸反馈，而不是一个视觉系统。因此，如果需要，它可以在完全黑暗中工作（补充视频2），这是在光敏光化学反应时的一个优势，如这里。机器人臂和移动底座符合协作机器人的安全标准，允许人类研究人员在同一物理空间内工作（补充信息第1.5节）。一段在48小时内机器人进行自主实验的视频。

将自动化实验与多层人工智能（人工智能）相结合的优点已经得到了证明

电反应堆²⁵，光伏薄膜¹³，为有机合成^{8-10,14}，钙钛矿²⁶以及在配方问题中¹⁸。然而，到目前为止，没有一种方法将移动机器人与人工智能集成进行化学实验。在这里，我们建立了贝叶斯优化算法¹⁶⁻¹⁸进入一个移动机器人的工作流，在一个十维的空间中进行光催化实验。促进整体水分裂产生氢和氧的半导体光催化剂仍然相当罕见¹⁵。对于许多催化剂，需要一种牺牲孔清除剂从水中产生氢，如三乙胺（TEA）²⁷或三乙醇胺（TEOA）²⁸，并且这些胺在反应中被不可逆地分解。事实证明，很难找到与这些有机胺竞争的替代洞食腐动物²⁹。

我们的目标是确定具有效率与石油化学胺相匹配且不会不可逆转分解的生物衍生孔清除剂，长期目标是发展可逆氧化还原航天飞机。我们选择的光催化剂是P10，一种共轭聚合物，在TEOA存在时显示良好的共轭聚合物²⁸。我们首先使用这个机器人来筛选30个候选的孔拾荒器（扩展数据图。4）。这是使用筛选方法完成的，没有任何人工智能。最初，机器人加载一个固体分配站，将任何固体部件称重到样品瓶中。1c），在这种情况下，是催化剂，P10。接下来，在机架中将16运送到双液体分配站（扩展数据图。3c），其中添加了液体成分，这里，50g l⁻¹候选孔清除剂的水溶液（补充视频3、4）。然后机器人将小瓶放入一个封顶站，将小瓶盖在氮气下（补充图。21、补充视频5）。可选择，然后将封顶的小瓶放到一个声波站（补充图。23、补充文件

¹莱弗休姆功能材料设计中心，材料创新工厂和利物浦大学化学系，英国利物浦。✉电子邮件地址：aicooper@liverpool.ac.uk



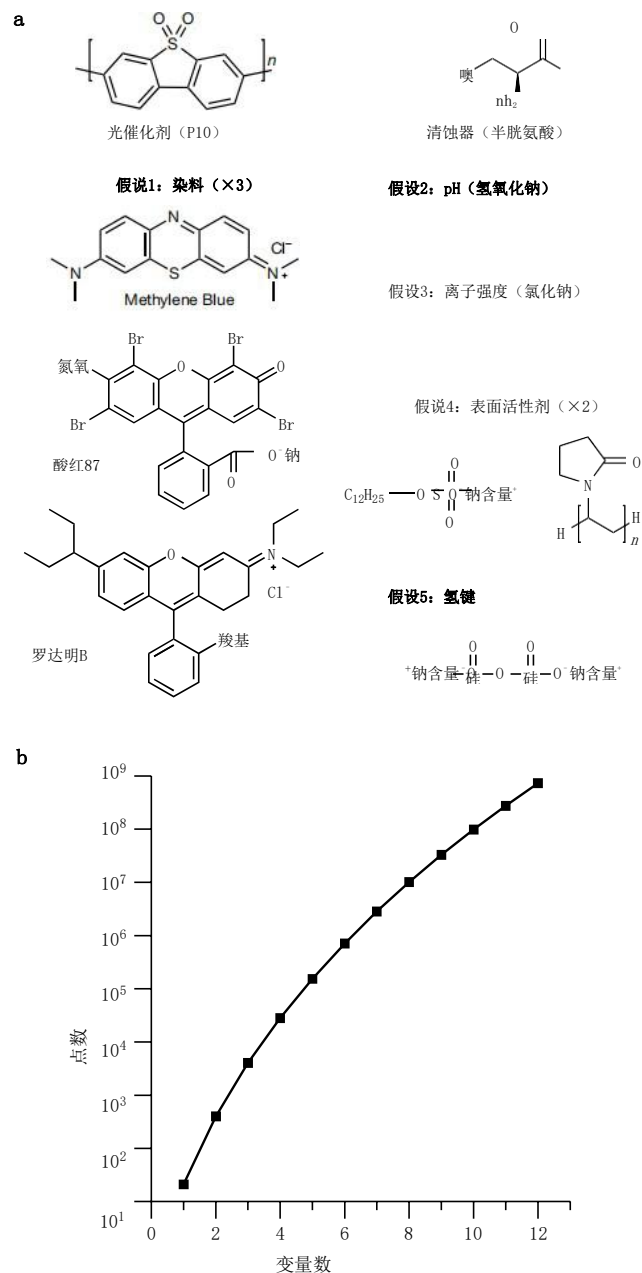
图中示。1个|自主移动机器人和实验站。a、显示机器人将样品加载到光解站的照片。b、激光扫描生成的实验室地图，显示八个站点的位置；橙色的十字线显示已记录的导航位置，机器人的位置由绿色的矩形表示。输入1-3是存储空瓶或完整样品架的区域。气相色谱仪，气相色谱分析站。c，机器人在分配光催化剂之前，将空的样品瓶装载到固体分配站。d、给气相色谱仪站装载一个新的样品架进行分析。e、气相色谱分析后存放输入站1完整样品架。

视频3) 在水相中分散固体催化剂。然后，这些小瓶被运送到一个光解站，在那里它们被紫外线和可见光的混合物照亮。1a. 扩展数据图。3b. 附图。24、补充视频6)。光解后，机器人将小瓶转移到头部空间气相色谱仪中

分析氢气的站。在储存完整的样品之前（图。1e）。除了专门为这个工作流建造的封盖站和光解站外，其他站使用商业仪器，没有物理硬件修改：机器人的操作方式与人类研究人员基本相同。

在这个孔清除器屏幕中使用了条件自动化来重复任何命中；也就是说，显示氢演化率(HER)为 $>200 \mu\text{mol g}^{-1} \text{h}^{-1}$ 的样本 $^{-1} \text{h}^{-1}$ 被自动重新分析了五次。30种食腐动物中的大多数很少或没有产生氢气（扩展数据图。4），除了为左型抗坏血酸酸性的（ $256 \pm 24 \mu\text{mol g}^{-1} \text{h}^{-1}$ ）以及1-半胱氨酸（ $1,201 \pm 88 \mu\text{mol g}^{-1} \text{h}^{-1}$ ）。分析方式 ^1H 核磁共振(NMR)光谱学显示的那个左-半胱氨酸是干净的已转换的到左胱氨酸（补充文件图中示。32），指示那个它可能具有的潜力作为一个可逆的氧化还原航天飞机的整体水分裂方案³⁰。

虽然1-半胱氨酸作为一种空穴清除剂显示出了潜力，但在相同的重量浓度下比TEOA水溶液产生的氢要少得多（ $2985 \pm 103 \mu\text{mol g}^{-1} \text{h}^{-1}$ 温度在 $50 \text{ g l}^{-1} \text{h}^{-1}$ ）。因此，我们可以使用寻求至增加的她的P10/1-半胱氨酸自动控制系统通过使用基于五个假设的自主机器人搜索。2a)。

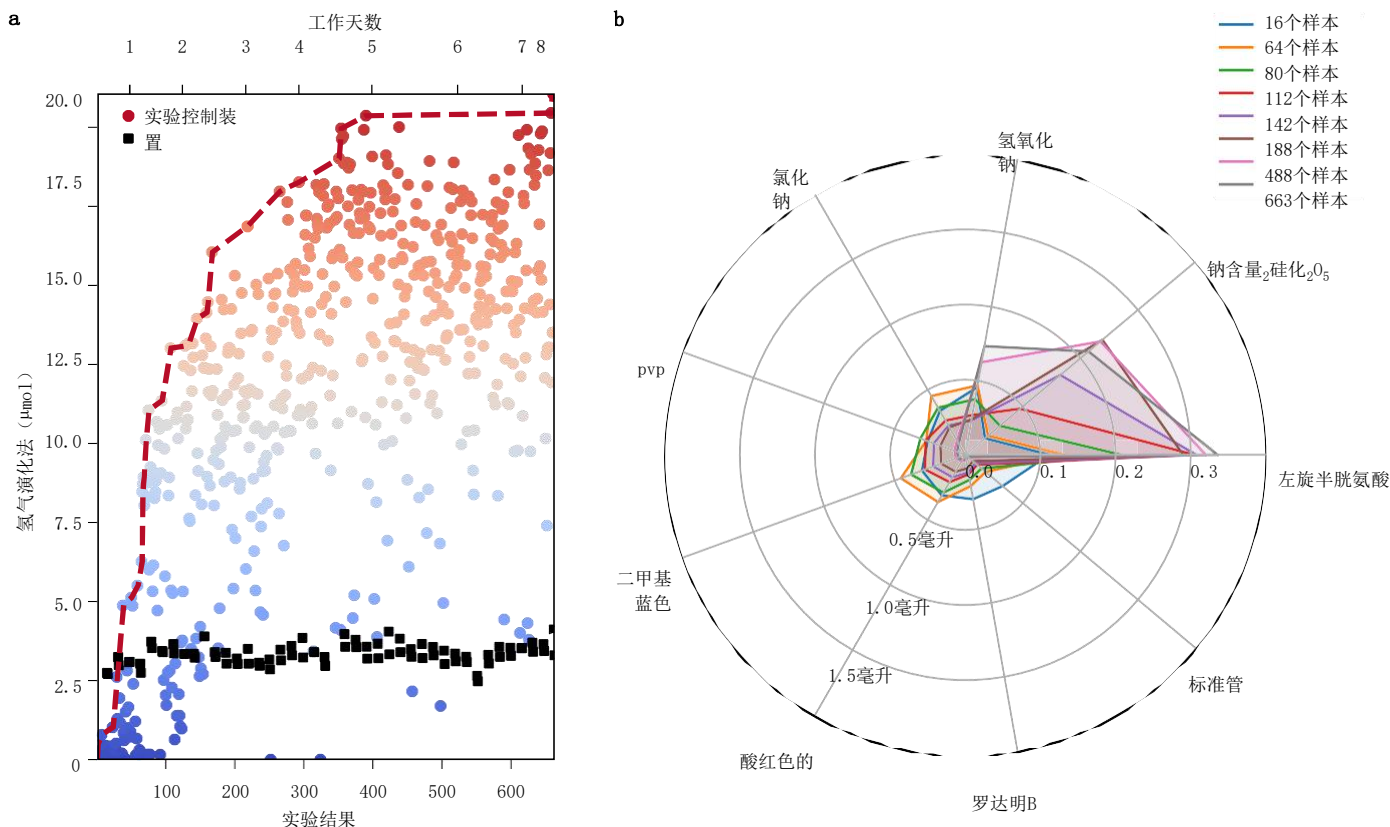


图中示。2。|假设主导的自主搜索策略。a，机器人在搜索

化学空间优化光催化剂+清除剂组合根据五个不同的假设。它通过同时改变这里所显示的十大化学物质的浓度来实现这一点。b，显示单纯形或搜索空间的大小的图，以每个液体的19浓度和P10的固体催化剂的21浓度水平的离散化创建，这对应于实验的约束空间上的固体/液体分配精度。为此，此

十组分问题，全单形有98423325分。

第一个假设是染料的敏化可能会提高光的吸收，因此HER，如结构相关的共价有机框架，FS-COF³¹。在这里，研究了三种染料(罗达明B，酸红87³¹和二甲基蓝)。其次，我们假设pH可能会影响催化活性（氢氧化钠添加）。第三个假设是，离子的强度也可能很重要³²（氯化钠添加）。催化剂的润湿性是使用共轭聚合物进行光催化氢演化的一个因素³³，因此添加表面活性剂(十二烷基硫酸钠、SDS、和



图中示。来自自动机器人搜索的3个|输出。a，显示在超过8天的自主搜索中实现的氢演化。每批进行16次实验，以及2个基线对照组。氢气的基线演化是 $3.36 \pm 0.30 \mu\text{mol l}^{-1}$ （黑色方块）。688次实验后获得的最大速率为 $21.05 \mu\text{mol l}^{-1}$ 。这个机器人在车站之间移动了319次

在这8天的实验中，总行程为2.17公里。b，显示搜索空间平均采样的千年演化的半径图；尺度表示分配的最大溶液体积的比例。随机选择起始条件（第1批）。43批后发现的最佳催化剂配方含有P10（5mg）、氢氧化钠（6mg）、L-半胱氨酸（200mg）和 $\text{Na}_2\text{Si}_2\text{O}_5$ （7.5毫克）在水中（5毫升）。

聚乙烯吡咯酮，PVP)形成了我们的第四个假设。第五，我们推测二硅酸钠可能作为清除剂、L-半胱氨酸或染料的氢键锚，基于观察到它有助于吸收氯化碳表面的染料³⁴。

这五个假设有协同或反协同的潜力；例如，离子强度可以增强或降低对光催化剂表面的染料吸收。因此，我们选择同时探索所有这五个假设。这涉及到P10、L-半胱氨酸、三种染料、氢氧化钠、氯化钠、两种表面活性剂和二硅酸钠的浓度的同时变化，这相当于一个10个变量的搜索空间(图. 2a)。该空间受到需要保持恒定的液体体积（5ml），因此需要保持进行气相色谱分析的头部空间，以及液体分配模块（0.25ml）和固体分配模块（0.2mg）的最小分辨率的限制。

这种类型的问题是由一个随大小呈指数尺度的单形定义的。2b)。对于这个特定的搜索空间，有超过9800万个点。对这种空间的充分探索是不可行的，因此我们开发了一种基于高斯过程回归和并行搜索策略的贝叶斯优化算法³⁵（请参见“方法”）。为了生成一个新的批次，我们建立了一个替代模型，基于目前所进行的测量来预测潜在公式的，并量化了预测的不确定性。随后的采样点使用资本主义收购策略选择，在贪婪的指数分布上生成上置信界函数组合，创造不同风险规避市场，寻找全球最大值。每个市场都有一个搜索返回全球最大值的代理，

或一批k-最佳的最大值。贪婪的不均匀分布使得一些建议的观点是高度剥削性的，一些是高度探索性的，大多数是平衡的，从而最有力地利用并行批次实验。

这个自主机器人搜索的输出如图所示。3a. 仅针对P10和L-半胱氨酸的基线HER（5mgP10/5ml的 20g l^{-1} L-半胱氨酸）是 $36.3 \pm 0.3 \mu\text{mol h}^{-1}$ 。给定的那个的机器人将会吗在多少天内自主操作，这种双组分混合物在整个搜索过程中重复（每批次两个样品），以检查长期的实验稳定性(图中的黑色方块。3a)。最初，机器人从随机条件开始，发现了多组分的催化剂配方，其活性大多不如P10和L-半胱氨酸单独的（即第一个22实验结果在图中示。3a)。的机器人随后发现，添加氯化钠为她提供了一个小的改进，验证了离子强度是重要的假设。在同一时期，机器人发现同时最大化P10和L-半胱氨酸增加的她的名字。在进一步的实验结果(15-100)，机器人发现，这三种染料或两种表面活性剂都没有改善她；事实上，它们都是有害的，与我们的第一个和第四个假设相反。因此，经过大约150个实验，这5个组件被取消了选择。4)；即，经过大约2天的实时实验时间(图. 3a)。在这里，P10不同于与结构相关的晶体融合砷共价有机框架(FS-COF)，其中添加的酸红87增加了HER³¹。经过30个实验，机器人了解到，在没有染料的情况下，添加二硅酸钠可以大大提高她的能力(300个实验后可以增加 $15 \mu\text{mol l}^{-1}$)，同时剥夺了氢氧化钠和氯化钠的添加。经过688次实验，即8天的自主搜索，机器人发现最佳的催化剂配方是a

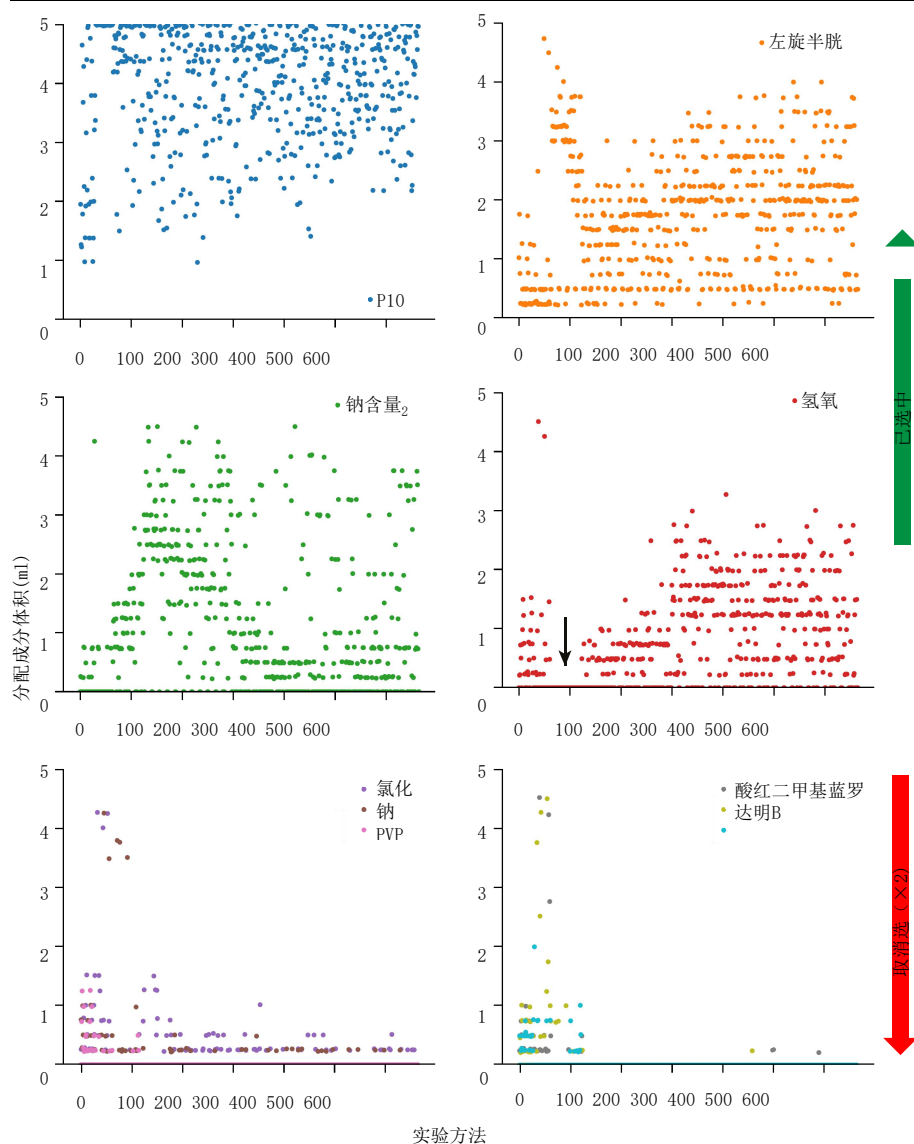


图4示。4|光催化剂配方成分的选择和解选。

显示搜索空间中各种部件的质量（以P10的毫米为单位）或体积（所有其他部件的毫升）的批次。选择光催化剂P10和清除剂1-半胱氨酸，以及二硅酸钠($\text{Na}_2\text{Si}_2\text{O}_5$)和氢氧化钠。经过大约150个实验，所有其他组件都被取消选择。这三种染料和两种表面活性剂对她有负面影响。氯化钠有一个小的积极影响，但比四个选择的组件少，因此它被取消选择。请注意，氢氧化钠最初被取消选择，并不包括在实验15-283中（见黑箭头），而 $\text{Na}_2\text{Si}_2\text{O}_5$ 左半胱氨酸也很受欢迎。氢氧化钠的积极作用最初被染料等负成分所掩盖。在后来的搜索中，氢氧化钠得到了青睐，最终最终选择了 $\text{Na}_2\text{Si}_2\text{O}_5$ ，说明了在搜索中使用贪婪的不均匀分布的好处。

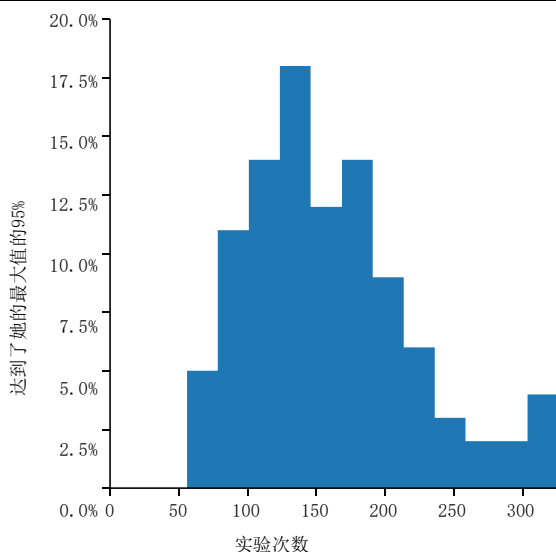
氢氧化钠，1-半胱氨酸，二硅酸钠和P10的混合物，给予她的 $21.05 \mu\text{mol h}^{-1}$ ，这是开始条件的六倍。从这些数据中可以得出许多科学的结论。增加离子强度有利于制氢（氯化钠添加），但不像增加pH(NaOH /二硅酸钠添加)那样有益，这也增加了离子强度。我们以前没有研究过表面活性剂的添加，但至少对这里研究的两种表面活性剂，对催化活性的影响纯粹是负的。有趣的是，我们对结构相似的共价有机框架FS-COF观察到的染料致敏化³¹，不转化为该聚合物P10，可能是因为共价有机框架是多孔的，而P10不是。为了探讨算法搜索性能对随机开始条件的依赖性，我们在回归模型中进行了100次虚拟搜索，使用回归模型和随机噪声返回虚拟结果（补充信息第7部分）。平均而言，大约需要160个虚拟实验来找到占全球最高值95%的求解方案。

5). 我们估计，一个人类研究人员需要几个月的时间，使用标准的手动方法，在相同的详细程度上探索这五个假设（补充图）。

31). 手工氢演化测量每个实验需要大约0.5天的研究时间（1000个实验需要500天）。我们最近开发的半自动的机器人方法³³每天可以进行100个实验（设置半天时间，加上半天时间进行自动分配和测量；1000个实验

10天，其中5天为专门研究时间）。我们在这里展示的自主机器人最初也需要半天时间来设置，但然后在几天无人看管下运行（1000个实验需要0.5天的研究时间）。因此，自主的工作流比手动方法快1000倍，至少比半自动化但非自动的机器人工作流快10倍。人类研究人员不太可能坚持使用手动方法的多变量实验，因为它可能需要50天或25天的实验来找到HER的适度增强（图. 3a）。该平台允许我们处理原本不可能大小的搜索空间，这有利于我们目前的理解水平不允许我们减少候选组件的数量到更可管理的问题。这里给出的示例中有10个组件，但是最多至少有20个组件的搜索空间应该可以处理，并对算法进行一些修改。

构建此工作流花费了最初的时间（大约2年），但一次运行时错误率较低（补充图），它可以用作一个常规工具。在另一个实验室实施这种方法所需的时间要短得多，因为2年的开发时间尺度主要涉及到可转移到其他研究问题上的核心协议和软件。此外，这种模块化的实验室自动化方法使用物理未修改形式的仪器，因此它将是直接添加进一步的模块，如核磁共振或x射线衍射，现在是基本的



图中示。5| 虚拟化，在硅质实验中。直方图显示了达到95%的虚拟实验数量，通过进行100次硅搜索确定，每个都有一个不同的随机起点。

原则已经到位。这种模块化使我们的策略适用于化学以外的广泛的研究问题。该方法的速度和效率允许探索大的多元空间，而自主机器人没有确认偏差³⁶；这就提出了我们无法以传统方式设计的复杂、多成分材料的紧急功能的前景。自主移动机器人在使用特别危险材料的实验中，或者可追溯性和审计很重要的优势，比如在制药过程中。

这种方法也有一些局限性。例如，贝叶斯优化是盲的，因为所有的分量都具有相同的初始重要性。这种机器人搜索并没有捕捉到现有的化学知识，也不包括理论或物理模型：没有计算性的大脑。而且，这个自主的系统目前并不能自己产生和测试科学的假设³⁷。在未来，我们建议将理论和物理模型与自主搜索相结合：例如，计算出来的结构和属性¹⁻⁵可以用于偏差搜索到具有更高可能性产生期望属性的组件。这对于具有更多组件的搜索空间将很重要，而纯粹的组合方法可能会变得低效。举一个例子，能量结构函数映射³⁸可以计算候选晶体成分提供玻尔兹曼能量权重³⁹对于计算的性质，如电荷传输或光学间隙，以偏置机器人搜索。

在线上的内容

任何方法、附加参考、自然研究报告摘要、源数据、扩展数据、补充信息、确认、同行评审信息；作者贡献和竞争兴趣的细节；以及数据和代码可用性声明可在 <https://doi.org/10.1038/s41586-020-2442-2> 获得。

1. 康, K. 孟。布雷格, J., 格雷, C. P. & Ceder, G. 高功率和高容量可充电锂电池的电极。 *科学* 311, 977–980 (2006)。
2. 伍德利, S. M. & Catlow, R. 从第一性原理来预测晶体结构。 *不。脱线*. 7, 937–946 (2008)。
3. 戈麦斯先生。等人。采用高通量虚拟筛选和实验方法设计高效的分子有机发光二极管。 *不。线* 15, 1120–1127 (2016)。
4. 柯林斯市。等人。加速在复杂无机相中发现两种晶体结构类型。 *自然* 546, 280–284 (2017)。

5. 戴维斯, D. W. 等人。金属卤化物半导体的计算机辅助设计：从化学组成到晶体结构。 *化学材料。科学研究*. 9, 1022–1030 (2018)。
6. 国王, R. D. 机器人科学家的崛起。 *科学研究。上午*. 304, 72–77 (2011)。
7. 李, J. 等人。用一种自动化工艺合成多种不同类型的有机小分子。 *科学* 347, 1221–1226 (2015)。
8. 德拉贡, 五, 桑, 亨森, A. B., 格林达, J. M. & Cronin, L. 化学反应的自主有机反应搜索引擎。 *不。请提交电子邮件*. 8, 15733 (2017)。
9. 床, A. & C. A. 等人。可重构的系统，以自动优化不同的化学反应。 *科学* 361, 1220–1225 (2018)。
10. 格林达, J. 多尼娜, L., 龙, V., 朗, d.-L. & Cronin, L. 控制一个具有机器学习能力的有机合成机器人来寻找新的反应性。 *自然* 559, 377–381 (2018)。
11. 表布, D. P. 等人。加快智能自动化时代清洁能源材料的发现。 *不。修订版。脱线*. 3, 5–20 (2018)。
12. 兰格纳, S. 等人。除了三元OPV：高通量实验和自动驾驶实验室优化多组分系统。预印本在 <https://arxiv.org/abs/1909年.03511> (2019)。
13. 麦克劳德, B. P. 等人。自动驾驶实验室，以加速发现薄膜材料。预印本在 <https://arxiv.1906年.05398> (2019)。
14. 斯坦纳, 南州。等人。由化学编程语言驱动模块化机器人系统中的有机合成。 *科学* 363, eaav2211 (2019)。
15. 王, Z., 李, C. & Domen, K. 太阳能驱动的异质光催化剂的最新进展。 *化学材料。大豆含量。修订版*. 48, 2109–2125 (2019)。
16. 沙赫里亚里, B., 斯维尔斯基, K., 王, Z., 亚当斯, R. P. & D. A. 让人类脱离循环：贝叶斯优化的回顾。 *项月*. 我104, 148–175 (2016)。
17. 哈斯, F., 罗克, L. 克雷斯基克, C. & Aspuru-Guzik, A. 腓尼学家：一个贝叶斯优化器

- 化学反应。 *ACS 百美分*. 科学4, 1134–1145 (2018)。
18. 罗克, L. M. 等人。化学操作：组织自主的实验。 *科学研究。机器人*. 3, eaat5559 (2018)。
 19. 陈, 陈。Urban, P. L. 由多个阿杜伊诺型微控制器引导的双机械臂“生产线”质谱分析。 *镜头。执行*. B239, 608–616 (2017)。
 20. 弗莱舍先生。等人。使用配备电子移液管的双臂机器人进行分析测量和高效的工艺生成。 *能量为* 11, 2567 (2018)。
 21. 刘, H., 斯托尔, N. 姜姜, S. & Thurow, K. 移动机器人自动化生活科学机器人。 *内部。J. 广告。机器人。系统节*. 10, 288 (2013)。
 22. 刘, H., 斯托尔, N. 姜姜, S. & Thurow, K. 移动机器人运输的快速方法。 *内部。J. 广告。机器人。系统节*. 11, 43 (2014)。
 23. 阿卜杜拉市。A., 刘, H., 斯托尔, N. & Thurow, K. 分布式生命科学实验室移动机器人多层导航的新方法。 *J. 锥针。科学研究。工程师*. 2016, 3589395 (2016)。
 24. Domel, A. 等人。面向工业环境的完全自主的移动操作。 *内部。J. 广告。机器人。系统节*. 14, <https://doi.org/10.1177/1729881417718588> (2017)。
 25. 施韦德曼, A. M. 等人。机器学习满足连续流化学：对多个目标的帕累托前面的自动优化。 *化学材料。工程师*. J352, 277–282 (2018)。
 26. 志, L. 等人。机器人加速钙钛矿调查与发现(快速)：1. 逆温结晶。在 <https://doi.org/10.26434/chemrxiv上> 进行预印本。10013090.v1 (2019)。
 27. 松冈市, S. 等人。低聚物(对苯乙烯)的光催化：三乙胺水中氢和乙醇的光还原生产。 *J. 物理类。化学材料*. 95, 5802–5808 (1991)。
 28. 蜀, G., 李, Y., 王, Z., 江, X. & Wang, F. 可见光诱导氢演化速率高达44.2 mmol的聚(二苯并噻吩S、二氧杂S)⁻¹g⁻¹h⁻¹推广。 *水波。应用程序。白内障*. B261, 118230 (2020)。
 29. 纽约州佩勒格林市。Odobel, F. 太阳能燃料生产用的牺牲电子供体试剂。 *C. R. 芯片*. 20, 283–295 (2017)。
 30. 坂本市, K., 张先生, S. J. & Yang, P. 半胱氨酸-半胱氨酸光再生的醋酸光合作用通过串联无机生物混合系统。 *纳米粒*. 16, 5883–5887 (2016)。
 31. 王志, X号。等人。含硫共价光催化氢有机框架。 *不。化学材料*. 10, 1180–1189 (2018)。
 32. 施瓦兹先生。等人。光催化氢气演化的量化。 *物理类。化学材料。化学材料。物理类*. 15, 3466–3472 (2013)。
 33. 白白。等人。通过实验和理论结合，加速发现氢的有机聚合物光催化剂。 *J. 上午。化学材料*. Soc141, 9063–9071 (2019)。
 34. 张, J. 等人。羟阴离子的h键效应增强了碘胺物的光催化降解N₂在水溶液中。 *J. 存在危险因素。脱线*. 366, 259–267 (2019)。
 35. 哈特, F., 胡斯, H. H. & Leyton-Brown, K. *并行算法配置55–70 (施普林格, 2012年)*。
 36. 迈纳特, C. R., 多尔蒂, M. E. & Tweney, R. D. A在模拟研究环境中的确认偏差：一种科学推理的实验研究。 *Q. J. 出口。精神*. 29, 85–95 (1977)。
 37. 国王, R. D. A等人。功能基因组假定的生成和机器人科学家的实验。自然出版社, 427, 247–252 (2004)。
 38. 普利多市。等人。利用能量-结构-函数图发现功能材料。 *自然* 543, 657–664 (2017)。
 39. 坎贝尔, J. E., 杨, J. & 日, G. M. 用于评估小分子有机半导体的预测的能量-结构-函数图。 *J. 脱线。化学材料*. C5, 7574–7584 (2017)。

出版商的笔记施普林格自然保持中立的出版地图中的管辖权主张和机构附属。

©的作者(s)，在独家许可下的施普林格自然有限公司2020年

研究方法

机器人技术规格

所使用的机器人是一个安装在KUKA移动平台基础上的KUKA移动机器人(图。1a. 扩展数据图。 1). 机器人臂的最大有效载荷为14公斤，可达820毫米。KUKA移动平台底座可携带高达200公斤的有效载荷。机器人臂和移动底座的组合质量约为430公斤。机器人的运动速度被限制在0.5m秒内⁻¹出于安全原因(补充信息的第1.5节)。设计了一个多用途的抓握器，以抓住10ml气相色谱仪样品瓶、固体分配盒和一个16位置的样品架(扩展数据图。5)，从而允许单个机器人执行此工作流所需的所有任务。这个机器人被指定为一个灵活的平台，用于广泛的研究任务，例如，臂的14kg有效载荷容量在这些实验中没有充分使用(一个填充瓶的质量为580克)，但它可以允许打开和关闭某些设备的门等操作。同样，机器人的高度和到达范围允许直接将样品装入气相色谱仪器(图。1d)。相比之下，一个更小、可能更便宜的机器人平台可能需要一个额外的专用机器人臂来完成这一点，或者对实验室进行不方便的修改，比如降低工作台的高度。

机器人导航

在类似于同时定位和映射的过程中(SLAM)⁴⁰，机器人跟踪一个可能位置的云，并将其位置更新到其激光扫描仪的输出和云中每个位置的地图之间的最佳匹配。机器人的位置由x和y(其在地图上的位置)和 θ (其方向角)决定。超过563次运动测量的机器人位置直方图如附图所示。2-5，这表明(x, y)定位精度优于 $\pm 10\text{mm}$ ，定位精度小于 $\pm 2.5^\circ$ ，如在一个真实的工作实验室环境中实现的。这种水平的精度允许导航到实验室中的各种实验站，但它不允许精细的操作，如放置样品瓶。因此，通过使用触摸敏感的6点校准方法，提高了精度。在这里，机器人触摸到与每个实验站相关联的立方体上的6个点，以找到立方体相对于机器人的位置和方向(补充图。 7-11)。这就将定位精度提高到 $\pm 0.12\text{mm}$ ，并将定位精度提高到 $\pm 0.005^\circ$ 。这使得机器人有可能操作仪器，并进行精细的操作，比如精确与人工操作员大致相当的小瓶放置。

试验站

工作流包括六个步骤，每个步骤都有自己的工作站。使用QuantosQS30仪器(梅特勒托莱托)(图。1c. 附图。11、扩展数据图。3a、补充视频3)。液体分配采用定制系统进行，使用200系列迷你渗透泵(威廉姆森)和PCG2500-1秤(Kern)，使用反馈回路按重量分配液体(补充信息第2.2节；补充视频5)。该系统对超过20,000份的水和非水液体显示了优异的精度和精度(补充图。 16, 17, 19, 20)。制造了一个定制的仪器(Labman)，允许样品惰化(排除氧气)和盖压接。修改这个平台可以直接引入其他气体；例如，研究光催化CO₂减少了。仪器使用从振动碗喂食器到10ml头空瓶的盖子(补充信息第2.2节；补充视频5)。如果需要，使用一个声波站来分散固体光催化剂在

反应前的水溶液，(补充图。 23)。光解是在一个定制的光解站进行的。1a)使用振动来搅拌液体和由BL368管和LED面板组成的光源(扩展数据图。5b. 附图。24、补充视频6)。使用气捷伦的7890B色谱和7890B7697A头空采样器进行气相色谱测量(补充视频3；扩展数据图。3d)。实验站由一个过程管理系统模块控制，该模块包含用于控制人工软件的所有过程逻辑。过程管理系统和各站之间的通信采用各种通信协议(WIFI/LAN上的TCP/IP；RS-232)，详见补充信息(补充图)第2.7节。28)。

自主搜索过程和调度

该机器人在每个样本架中处理了16个样本，并在搜索过程中运行了43批(688个实验)。在这688个实验中，由于工作流错误或系统标记为氧气含量过高(小瓶密封故障)，有11个结果被丢弃。每批样品平均需要183min制备和光化，每批需要232min完成气相色谱分析。工作流中每个步骤的详细时间尺度如扩展数据图所示。 6. 这项工作被启发式地并行安排好了，机器人开始了最古老的计划工作。当机器人在做一项工作时，其他仪器，如固体分配器、光解站和气相色谱仪，都在并行工作。该系统可以一次处理多达6个批次，但考虑到这个特定工作流的时间尺度，其中准备/反应时间大约等于分析时间，机器人同时处理两个批次。也就是说，它在用气相色谱仪分析第二批生产的氢气时，制备了一批样品并进行了光解处理。当电池充电达到25%的阈值时，机器人会在两个工作之间自动给电池充电。在这个实验中，这个机器人被充电了，但大约32%的时间是空闲的，主要是因为它花了时间等待气相色谱分析，这是一个缓慢的步骤。原则上，这段时间可以用来并行进行其他实验。自动工作流被编程为在系统缺货(例如，如果系统用完样品瓶或库存解决方案不足)，或部分工作流失败(补充信息第8节)时自动提醒操作员。大多数错误都可以在不进入实验室的情况下进行远程重置，因为所有的电台都配备了24/7的闭路电视摄像头(补充图。 39)。

贝叶斯搜索算法

自主移动机器人的人工智能制导是一种分批、约束、离散 of 贝叶斯优化算法。传统上，贝叶斯优化是一种串行算法，负责寻找未知目标函数的全局最大值¹⁶。在这里，这相当于在多组分混合物中寻找光催化氢生成的最佳浓度集。该算法建立了一个模型，可以更新和查询最有前途的点，以为随后的实验提供信息。这个代理模型是一致的通过首先选择一个函数先验来构造 $\phi_{\text{之前}}(\theta)$ ，根据存在的情况进行通知-了解化学知识(如有)。给定的数据D和一个似然模型

$\phi_{\text{可能性}}(D|\theta)$ ，这就产生了一个模型的后验分布，即使用贝叶斯定理：

$$\phi_{\text{posterior}}(\theta|D) = \frac{\phi_{\text{likelihood}}(D|\theta)\phi_{\text{prior}}(\theta)}{\phi(D)} \quad (1)$$

高斯过程先验使用了矩阵相似核、常数尺度和同方差噪声⁴¹。这种复合核允许可变的平滑度，催化活性和实验噪声。表格

通过对其他历史光催化数据集（350个实验）的交叉验证，改进了各自的超参数。功能先验的其他替代方案包括贝叶斯神经网络¹⁷；但是在这里选择高斯过程是为了提高鲁棒性和灵活性⁴²。一个采集功能， α 粘管，通过考虑后验平均值 $\mu(x)$ 和不确定性 $\sigma(x)$ ，从后验分布组合起来。这个函数的最大值然后被用作下一个建议的实验。为了平衡开发（平均平均值最大的优先区域）和探索（确定模型最不确定的优先区域），我们使用依赖于单一超参数 β 的上置信度界来控制搜索的“贪婪”（剥削性）：

$$\alpha_{\text{UCB}}(x; \mathcal{D}) := \mu(x) + \beta \sigma(x) \tag{2}$$

针对不同值的 β 的收购功能组合，我们称为市场，被用于生成一批。这种“资本主义”方法具有简单的并行性的优点，并且在可变的批处理大小之间具有鲁棒性³⁵。我们的方法允许我们将所有液体组分的总和限制在5ml以内，以允许气相色谱分析的恒定的气相色谱头空间体积。市场搜索期间处理总量约束：由仪器分辨率确定的离散化，在市场搜索后处理。市场搜索使用一个大的初始随机抽样完成，然后使用序列最小二乘规划 (SLSQP) 算法实现一批种子本地最大化。这种最大化发生在一个连续的空间，结果被放置到离散的箱遵循实验精度。将所探索的空间作为模型构建的连续变量，并作为获取函数最大化的离散变量。该算法使用科学学习和科学包实现⁴³。

材料和合成工艺规程

根据对文献程序的修改，合成并纯化了聚合物光催化剂P10⁴⁴（补充资料的第10节）。对于固体分配，聚合物在使用前用研钵和杵研磨。二硅酸钠作为游离样品获得。自来水用PURELAB超系统净化。所有其他材料都从西格玛-奥尔德里奇购买，并在收到时使用。

数据的可用性

液体分配站、光解站和工作流的实现，以及在项目中开发的人工智能软件的三维设计，可在https://bitbucket.org/ben_burger/kuka_workflow获得，机器人代码和贝叶斯优化器可在https://github.com/Taurnist/kuka_workflow_tantalus 和https://github.com/CooperComputationalCaucus/kuka_optimizer获得。可根据要求从作者处获得其他设计细节。

40. 富恩特斯-帕切科, 鲁伊斯-阿森乔, &Rendon-Mancha, J. M. 视觉同步定位和映射：一个调查。项目。告知。修订版。 43, 55 – 81 (2015)。
41. 拉斯穆森市。 E. &威康姆斯, C.。 K. I. 高斯过程 (麻省理工学院出版社, 2006)。
42. 马修斯, A.。 G. & G., 罗兰, 赫伦, 特纳, R. E. & Ghahramani, Z.。 宽深度神经网络中的高斯过程行为。预印本在<https://arxiv.1804年.11271> (2018)。
43. 米尔曼市, K.。 J. & Aivazis, M.。 Python为科学家和工程师设计。投入。科学研究。工程师。 13, 9 – 12 (2011)。
44. 萨克斯先生。等人。了解线性聚合物光催化剂的结构-活性关系。不。请提交电子邮件。 9, 4968 (2018)。

我们通过莱弗休姆功能材料设计研究中心、工程和物理科学研究委员会 (EPSRC) (资助号EP/N004884/1)、牛顿基金(资助号EP/R003580/1)和CSols有限公司的财政支持。X.W.和Y.。B. &感谢中国奖学金委员会的博士奖学金。我们感谢KUKA机器人公司对抓握器设计和机器人的初始实现的帮助。

作者的贡献 B. & B. & 开发了工作流程，开发并实现了机器人定位方法，编写了控制软件，设计了定制的光催化站，并进行了实验。P. M. M. 和V.。开发了优化器及其与控制软件的接口。X. L. 关于光催化工作流程的建议。C. M. A., Y. B. & 以及 X. L. 合成材料。Y. B. & 进行了动力学光催化实验。X. W. 进行了核磁共振分析和合成材料。 B. L. 进行了初步的清除剂筛选。R. C. 以及 N. R. 帮助在工作流中构建了定制的工作站。 B. H. 分析了系统的鲁棒性，协助了控制软件的开发，并在一些实验中操作了工作流程。 B. M. A. & 帮助监督自动化工作。R. S. S. 帮助监督光催化工作。 A. I. C. & 构思了这个想法，建立了五个假设 B. & B., 并协调了研究小组。数据是由所有的作者解释的，手稿是由 A. I. C., & B. & B., P. M. M., V. V. G. 和R. S. S.。

作者宣布没有相互竞争的利益。

其他信息

本文可在<https://doi.org/10.1038/s41586-0202442-2>上获得补充信息。

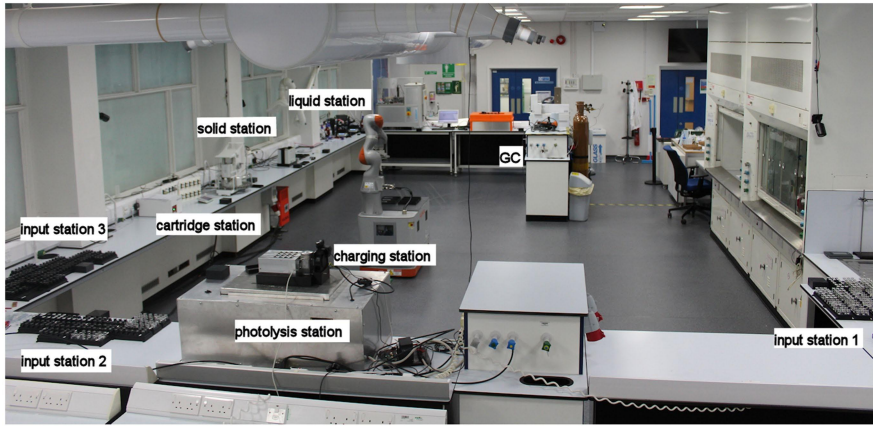
通信和材料要求应提交至 A. I. C. &

自然感谢沃尔克克鲁格, 泰勒麦奎德和玛格达蒂蒂里奇对这项工作的同行评审的贡献。

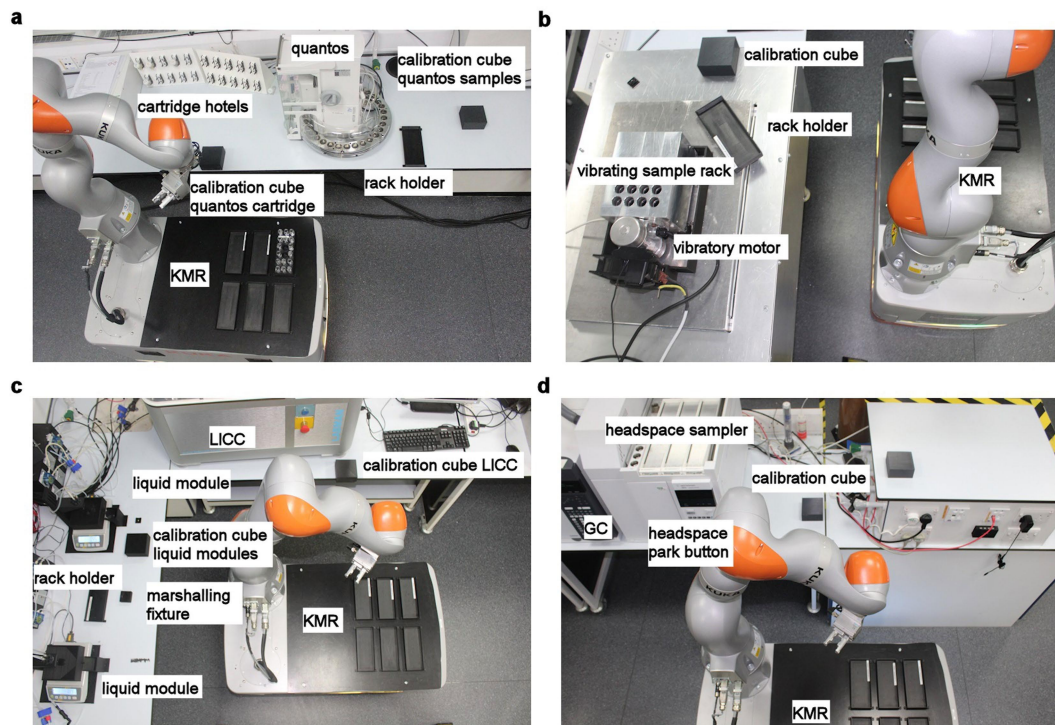
重印和权限信息可在<http://www.nature.com/reprints>。



扩展的数据图。1|移动机器人化学家。本项目使用的移动机器人，此处所示对连接到工作台上的黑色位置立方体进行六点校准，在此情况下与固体盒站相关（参见补充图。11和扩展数据图中示。3a）。

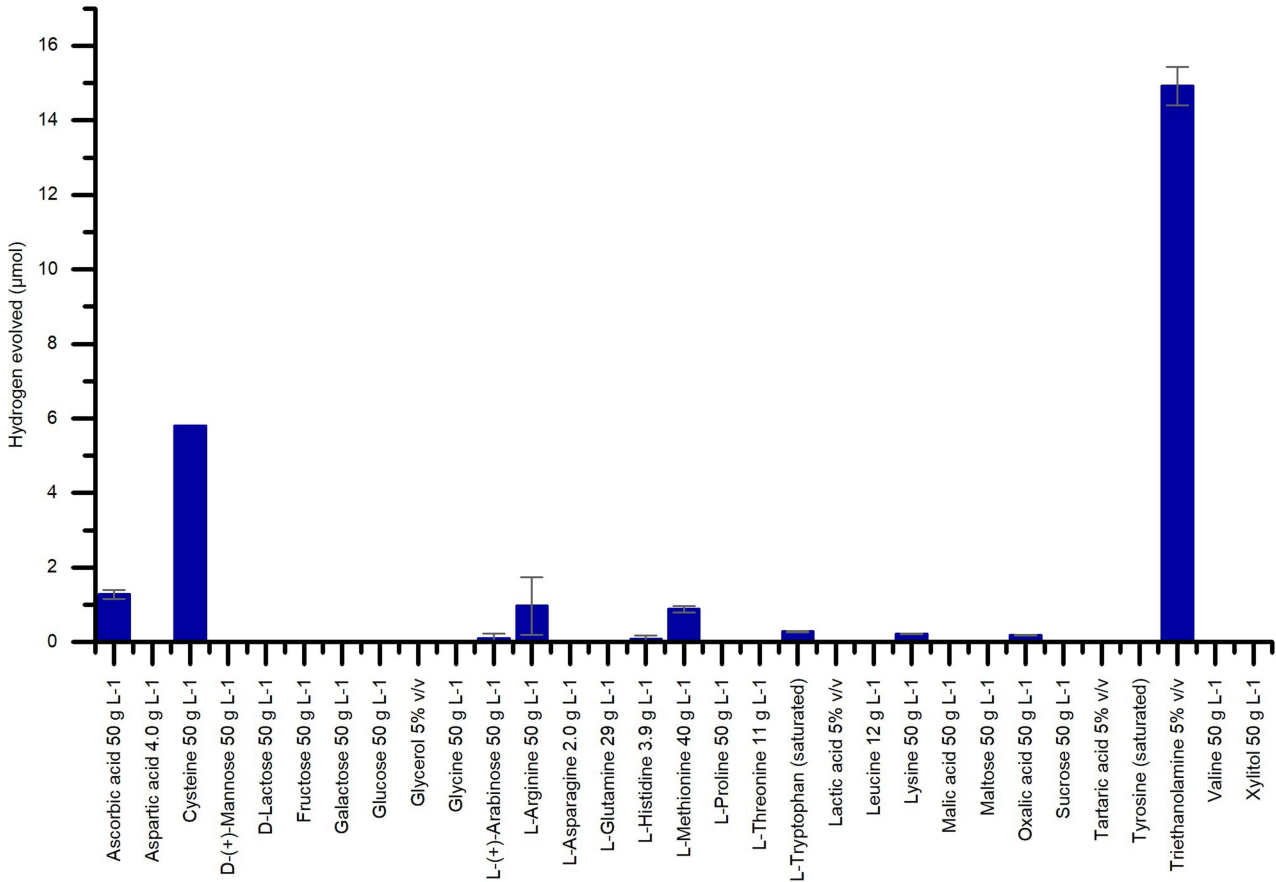


扩展的数据图。2. 用于自主实验的实验室空间。 workflows 中的关键位置将被标记。除了固定在工作台上的黑色位置立方块以允许位置（参见扩展数据图。1），否则实验室未经修改。



扩展的数据图。 workflow中的3个|工作站。 a，显示机器人在固体分配/盒站的照片。这两个盒式酒店最多可以容纳20种不同的固体；在这里，四个墨盒位于酒店的左边。Quantos分配器的门使用定制工作流程软件打开，在将正确的固体分配盒加载到仪器之前，与仪器提供的命令软件接口（补充视频3）。因为KUKA的移动机器人是自由漫游，有820毫米的距离，在有足够的实验室空间时，将这种模块化方法扩展到数百上千种不同的固体将很简单。b，显示KUKA移动机器人的照片

光解站（另见补充视频3、6）。c，显示KUKA移动机器人在组合液体处理/封顶站的照片。机器人在六点定位后可到达液体站和利物浦惰化盖（LICC）站，以便在一个协调的过程中进行液体添加、顶空惰化和盖（见补充视频3、5），而无需任何位置重新校准。d、KUKA移动机器人停放在顶空气相色谱仪（GC）站的照片。气相色谱仪是一种标准的商业仪器，在本工作流程中未进行修改。



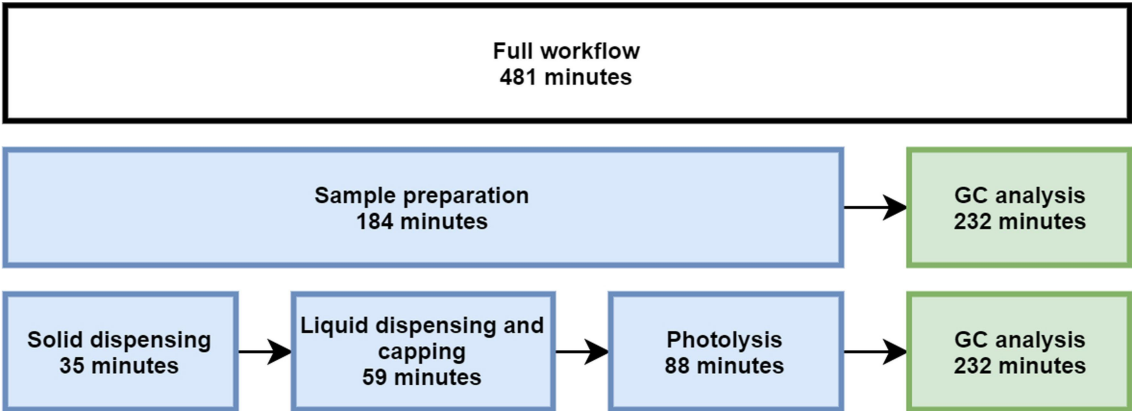
扩展的数据图。4 | 候选生物衍生牺牲孔拾腐剂的氢气演化率。利用移动机器人工作流的牺牲孔清除器机器人屏幕的结果。在试验的30个生物衍生分子中，只发现半胱氨酸与石化胺竞争，

三乙醇胺。空蚀剂标记所使用的原料溶液的浓度（5ml体积；5mgP10）。误差栏显示了标准偏差。



扩展的数据图。5在工作流中使用的|多用途夹钳。握把抓着各种物体。
a，空夹，b，夹持一个有盖的样品瓶（顶部抓住），夹持一个无盖的样品瓶（侧面抓住），夹持一个固体分配盒；

e，夹具持有一个完整的样品机架，使用向外抓，锁定在机架的凹槽。该握把也用于使用物理按钮按键激活气相色谱仪（参见补充视频3；1min52）。



扩展的数据图。6个工作流中的步骤的时间尺度。一批次16个实验的工作流程中各个步骤（样品制备、光解和分析）的平均时间尺度。这些平均值计算了超过46个单独的批次。这些平均时间包括时间

装卸步骤（例如，光解时间本身为60min，每批平均装卸取28min）。工作流程中最慢的步骤是气相色谱分析。