

APARATURA BADAWCZA I DYDAKTYCZNA

Automatyzacja i robotyzacja metod przygotowania próbek do analiz chemicznych

PAWEŁ ROGALA¹, MARCIN BIELECKI¹, ZYGFRYD WITKIEWICZ²

¹UNIWERSYTET JANA KOCHANOWSKIEGO W KIELCACH, WYDZIAŁ MATEMATYCZNO-PRZYRODNICZY, INSTYTUT CHEMII

²WOJSKOWA AKADEMIA TECHNICZNA, WYDZIAŁ NOWYCH TECHNOLOGII I CHEMII, INSTYTUT CHEMII

Słowa kluczowe: przygotowanie próbek, automatyzacja, robotyzacja

STRESZCZENIE:

Przedmiotem artykułu jest przegląd metod przygotowania próbek do analizy chemicznej, w których proces przygotowania próbki jest zautomatyzowany i sprzężony z przyrządem pomiarowym. Zaprezentowano przykłady metod przygotowania próbek ciekłych i stałych z elementami automatyzacji i robotyzacji tego procesu.

Automation and robotization of samples preparation methods for chemical analysis

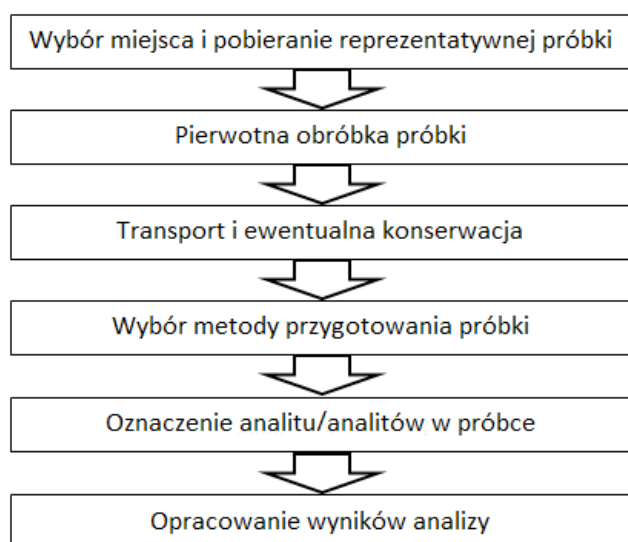
Keywords: sample preparation, automation, robotization

ABSTRACT:

The subject of the article is a review of method samples preparation for chemical analysis, in which the sample preparation process is automated and coupled to the measuring instrument. Examples of methods for preparing liquid and solid samples with elements of automation and robotization of this process are presented.

1. WPROWADZENIE

Każda analiza wymaga od analityka postawienia sobie na początku kilku ważnych pytań: Jaka próbka jest przedmiotem badań? Czy i jaki analit oraz w jakiej ilości znajduje się w próbce? Jaką metodą można ten analit oznaczyć? Po odpowiedzi na te pytania nasuwają się kolejne: Jak przygotować próbkę do analizy? Jak usunąć interferenty? Seria tych pytań i odpowiedzi na nie pozwoli analitykowi dobrać odpowiednią metodę lub metody analizy badanego materiału lub wykluczyć te, których nie można zastosować z uwagi na różnego rodzaju ograniczenia. Procedura oznaczenia analitu/analitów w próbce składa się z kilku etapów. Na Rysunku 1 zaprezentowano schemat procedury analitycznej.



Rysunek 1 Schemat procedury analitycznej oznaczania analitów [1]

Złożoność matrycy próbki, w której znajduje się analit, wymaga od analityka określonej strategii działań. Bardzo ważnymi etapami prowadzącymi do sukcesu analitycznego jest właściwe pobranie próbki oraz właściwe przygotowanie jej do analizy. Każdorazowa zmiana składu ilościowego i jakościowego próbki na etapie jej przygotowania do analizy powinna być przeprowadzana w sposób w pełni kontrolowany. Etap przygotowania próbki zajmuje średnio ok. 60% czasu całej analizy. Praca wykonana w tym etapie jest bardzo ważna, ponieważ jakość przygotowania próbki decyduje o poprawności uzyskanych wyników [2].

Błędy popełniane podczas etapów procedury analitycznej mogą być w dużym stopniu związane z niereprezentatywnym pobraniem próbki oraz niewłaściwym jej przygotowaniem. Wyso-

ką jakość przygotowania próbki oraz skrócenie czasu jej przygotowania można uzyskać w wyniku automatyzacji tego procesu, połączonego z bezpośrednim dozowaniem próbki analitycznej do przyrządu analitycznego. Automatyzacja jest obecnie bardzo popularna w przypadku analiz chemicznych materiałów ze złożonymi matrycami, w których analit występuje w niewielkiej ilości bądź jest nietrwały. Automatyzacja przygotowania próbki powinna zapewnić, że nie będzie ono czasochłonne, będzie proste metodycznie oraz doprowadzi do wydzielenia analitów z badanego materiału. Taka automatyzacja jest rozwiązaniem zgodnym z zasadami zielonej chemii analitycznej [3, 4]. Dodatkowo możliwość realizacji kolejnych etapów analizy za pomocą automatów czy robotów w znaczny sposób ogranicza udział operatora, który często powoduje błędy, na przykład podczas dozowania próbki do kolumny chromatograficznej.

2. TRYB ON-LINE I OFF-LINE PRZYGOTOWANIA PRÓBEK DO ANALIZY

Wyróżnia się dwa tryby przygotowania próbki: on-line i off-line. Przygotowanie próbki w trybie on-line polega na wykorzystaniu przyrządów do przygotowania próbki połączonych bezpośrednio z przyrządem analitycznym. Pozwala to uniknąć strat analitu obecnego w próbce i umożliwia otrzymywanie wyników w czasie rzeczywistym. Jest to ważne w przypadku analiz na potrzeby kontroli procesów technologicznych. Niepożądanym wynikiem analizy jest informacją o nieprawidłowym przebiegu procesu technologicznego. Dzięki temu kontrolujący ten proces może w odpowiedni sposób reagować. Wadą trybu on-line jest to, że cała przygotowana próbka jest wprowadzana do przyrządu analitycznego i nie ma możliwości powtórzenia jej analizy lub wykonania oznaczenia analitów inną metodą. Znacznym ograniczeniem jest także wysoki koszt aparatury i jej eksploatacji. Ten tryb jest zwykle automatyzowany.

W trybie off-line urządzenie wykorzystywane do przygotowania próbki nie jest bezpośrednio połączone z przyrządem analitycznym, a dozowanie do przyrządu najczęściej odbywa się manualnie przez analityka. Jest to główny powód niskiej dokładności i powtarzalności wyników oznaczeń tym trybem [5]. W Tabeli 1 porównano czasy przygotowania próbek w trybie on-line i off-line na przykładzie ekstrakcji do fazy stałej. Analizę

wykonano za pomocą układu HPLC-DAD-MS. Czas jej wykonania w obu przypadkach wynosił 25 minut.

Tabela 1 Porównanie czasu przygotowania próbki wody zawierającej farmaceutyki do analizy w trybie on-line i off-line [6]

SPE w układzie off-line	SPE w układzie on-line
Objętość próbki 100 ml	Objętość próbki 100 ml
Wstępne przygotowanie próbki (2 minuty)	Wstępne przygotowanie próbki (2 minuty)
Przygotowanie kolumnienek (18 minut)	Przygotowanie kolumnienek (8 minut)
EKSTRAKCYJA SPE (70 minut)	EKSTRAKCYJA SPE (35 minut)
Suszenie złoża kolumnienki SPE (5 minut)	Przełączenie zaworu
Elucja analitów (20 minut)	
Odparowanie rozpuszczalnika (200 minut)	
Odparowanie pozostałości (30 minut)	
CZAS CAŁKOWITY 345 minut	CZAS CAŁKOWITY 45 minut

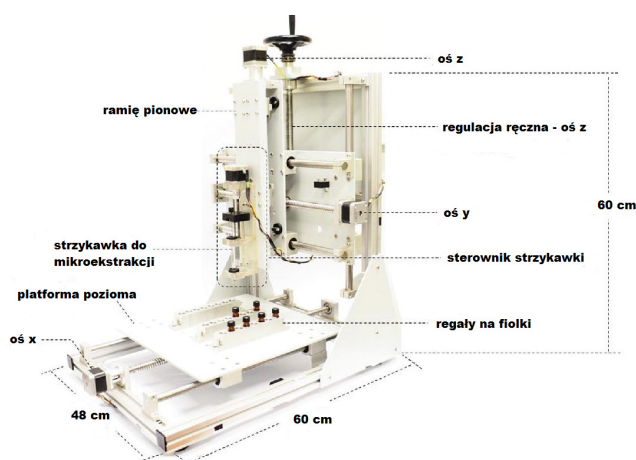
3. AUTOMATYZACJA ZMINIATURYZOWANYCH URZĄDZEŃ DO PRZYGOTOWANIA PRÓBEK DO ANALIZY

Automatyzacja etapu przygotowania próbek zwiększa możliwości analityczne laboratorium, wpływa na precyzję i dokładność oznaczeń analitów, jednocześnie zapobiegając ryzyku narażenia ludzi na czynniki chemiczne lub biologiczne. Poza pełną automatyzacją etapów przygotowania próbki i jej dozowania do przyrządu analitycznego ważnym aspektem jest miniaturyzacja urządzeń stosowanych w procesie analitycznym. Zastosowanie zminiaturyzowanych (mobilnych) przyrządów analitycznych pozwala wykonać analizę chemiczną próbek w skali mikro. Takie przyrządy umożliwiają często oznaczenie analitu w miejscu pobrania próbki, niwelując tym samym możliwość straty analitu bądź zanieczyszczenia próbki podczas jej transportu.

Najczęściej stosowaną metodą przygotowania próbek z matrycami złożonymi jest mikroekstrakcja do fazy stałej lub ciekłej. Klasyczne metody mikroekstrakcji do fazy ciekłej są wciąż udoskonalane i modyfikowane tak, aby w znaczny sposób spełniały wymagania zielonej chemii anali-

tycznej. Stosowana powszechnie mikroekstrakcja ciecz-ciecz, w której wykorzystuje się rozpuszczalniki w objętościach mikrolitrowych lub mililitrowych, występuje w wielu wariantach [7]. Należy do nich mikroekstrakcja do pojedynczej kropli (ang. *Single Drop Microextraction* – SDME). Mikroekstrakcja do pojedynczej kropli jest metodą charakteryzującą się wysoką selektywnością, niskimi wartościami wykrywalności analitów, prostotą i dużą szybkością prowadzenia ekstrakcji, wymagającą niewielkiej objętości próbki. W tej metodzie wykorzystuje się mikrostrzykawki chromatograficzne, w których na końcu igły wytwarza się wiszącą kroplę [1]. Bardzo ważna jest możliwość automatyzacji procesu, która pozwala uzyskać odpowiednią precyzję pomiarów i zapewnia powtarzalność oznaczeń.

Mikroekstrakcję do pojedynczej kropli można wykonywać przy wykorzystaniu robotów kartezyjskich typu xyz. Urządzenia tego typu charakteryzują się możliwością pracy w trzech wymiarach. Robot kartezyjski xyz jest wyposażony w boczne (oś y), poziome (oś x) i pionowe (oś z) mechanizmy pozycjonowania. Schemat robota kartezyjskiego do mikroekstrakcji do pojedynczej kropli przedstawia Rysunek 2.

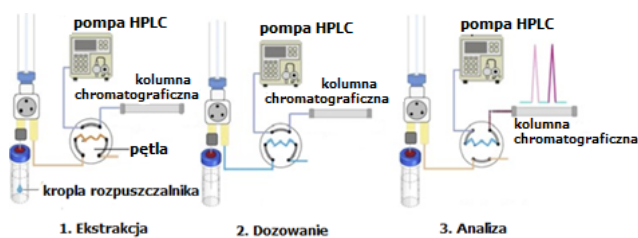


Rysunek 2 Robot kartezyjski typu xyz [8]

Robot ten umożliwia prowadzenie mikroekstrakcji z fazy stałej i ciekłej, wstępne zateżenie analitów oraz łączenie on-line etapu przygotowania próbki z chromatografią cieczą lub gazową. Cała procedura przygotowania próbki i jej wprowadzania do przyrządu analitycznego jest prowadzona w sposób automatyczny. Taki robot był stosowany np. podczas przygotowania próbek ścieków do analizy wielopierścieniowych węglowodorów aromatycznych. Oprócz mikroekstrakcji pojedynczą kroplą rozpuszczalnika urządzenie

umożliwia wykonywanie mikroekstrakcji przez membranę do fazy ciekłej (ang. *Hollow Fiber Liquid Phase Microextraction* – HF-LPME) i mikroekstrakcji do upakowanego sorbentu (ang. *Microextraction by Packed Sorbent* – MEPS) [8].

Medina i inni [9] przeprowadzili mikroekstrakcję pojedynczą kroplą i oznaczali pochodne triazyny w wodzie kokosowej za pomocą zautomatyzowanego układu sprzężonego z chromatografem cieczowym. Automatyczny proces mikroekstrakcji został przeprowadzony za pomocą xyz-kartezjańskiego robota Arduino sterowanego za pośrednictwem odpowiedniego oprogramowania. Robot ten jest wyposażony w sterownik mikrostrzykawki, który umożliwia jej napełnianie, dozowanie i płukanie. Tworzenie kropli o określonej objętości jest zautomatyzowaną procedurą, którą programuje analityk. Po przeprowadzeniu mikroekstrakcji mikrostrzykawka jest łączona przez mikrozwór sześciopiętrowy z kolumną chromatograficzną. Po zadozowaniu próbki zawór wraca do pozycji wyjściowej, następuje oczyszczenie systemu prowadzenia mikroekstrakcji i przygotowana jest następna ekstrakcja. Schematyczne przedstawienie zautomatyzowanej procedury SDME-LC przedstawia Rysunek 3.



Rysunek 3 Schemat zautomatyzowanej procedury SDME-LC [9]

Inną często stosowaną techniką przygotowania próbek ciekłych i stałych do analizy jest mikroekstrakcja do fazy stacjonarnej (ang. *Solid Phase Microextraction* – SPME). Technika ta jest coraz częściej automatyzowana. Jest ona np. wykorzystywana do szybkich i dokładnych analiz w laboratoriach klinicznych w zautomatyzowanych modułach analitycznych (ang. *Clinical Laboratory Automation Module* – CLAM). Automat do przygotowania próbek jest zintegrowany z aparatem LC/MS i sterowany za pomocą oprogramowania komputera. System ten został użyty do analizy leków z granicą wykrywalności na poziomie 2 ng/ml [10]. Za pomocą modułu CLAM-LC-MS/MS analizowano np. sterydy i leki przeciwwyrtmiczne w osoczu krwi. System cechuje wysoka wydaj-

ność, dokładność, odtwarzalność i zwiększenie bezpieczeństwa pracowników laboratorium [11]. Zastosowanie tego rozwiązania pozwala badać stężenie leków w krwiobiegu w trakcie terapii. System umożliwia śledzenie na bieżąco zmienności biologicznej i farmakokinetycznej leków. Układ zastosowano np. do analizy sterydów w osoczu krwi [12].

Zastosowanie modułu CLAM spowodowało dziesięciokrotne przyspieszenie przygotowania próbek w porównaniu z tradycyjną procedurą oraz pozwoliło uprościć czasochłonne i złożone procedury wykonywane w trybie off-line.

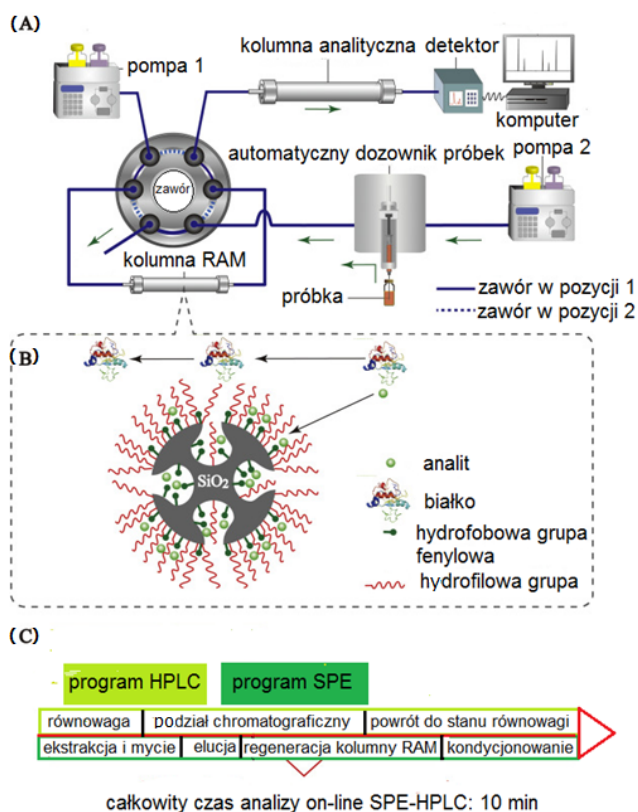
Firma Markes International oferuje zautomatyzowany system pobierania próbek lotnych i średnio lotnych związków organicznych oraz ich wstępnego zateżnienia z próbek stałych, cieczy i gazów przed analizą GC-MS przy użyciu aparatu CENTRI. W aparacie tym oprócz techniki SPME zastosowano adsorpcję analitów na sorbencie HiSorb™ z cieczy i z fazy nadpowierzchniowej z następną ich termiczną desorpcją. CENTRI umożliwia usunięcie interferentów, w tym wody, z matrycy próbki i uzyskanie wykrywalności na poziomie ppt. Urządzenie CENTRI może być wygodnym rozwiązaniem dla laboratoriów środowiskowych oraz medycznych, gdzie wykorzystuje się metodę GC-MS, w której etap przygotowania próbek do analizy jest czasochłonny [13].

Urządzenie do automatycznego pobierania i dozowania próbek zastosowano do analizy lotnych związków organicznych w ściekach. Automat pobiera próbki ścieków z komórki przepływowej według określonego programu do fiolek, a następnie dozuje je do przyrządu analitycznego. Takie rozwiązanie pozwala kontrolować pojawienie się ewentualnych zanieczyszczeń w czasie rzeczywistym. Umieszczenie wielu fiolek w dozowniku daje możliwość prowadzenia analiz ciągłych bez nadzoru. Do analizy wykorzystano chromatograf gazowy z detekcją FID i/lub TOF MS. Za pomocą FID można w sposób ciągły monitorować pojawianie się zanieczyszczeń, a za pomocą TOF MS przeprowadza się analizę potwierdzającą i identyfikującą zanieczyszczenie [14].

4. AUTOMATYZACJA EKSTRAKЦИИ DO FAZY STAŁEJ

Popularną metodą przygotowania próbek do analizy jest ekstrakcja do fazy stałej (ang. *Solid Phase Extraction* – SPE). Jest ona coraz częściej

stosowana w wersji on-line w połączeniu z wysokosprawną chromatografią ciekową (HPLC). W takiej konfiguracji kolumna ekstrakcyjna pełni rolę przedkolumny, w której zachodzi ekstrakcja analitów. He i inni [15] zaproponowali zautomatyzowaną metodę SPE-HPLC on-line z wykorzystaniem kolumny ekstrakcyjnej RAM (ang. *Restricted Access Media* – RAM) do rutynowego oznaczania aminosulprydu w osoczu krwi ludzkiej. Kolumna typu RAM zapobiega dostępowi makrocząsteczek (w tym białek) do tych obszarów sorbentu, w których zachodzi zatrzymywanie analitu. W powyższej metodzie sterowanie pompami układu SPE i HPLC, zaworem sześciodrożnym i automatycznym dozownikiem zostało wykonane za pomocą zintegrowanego oprogramowania. W tym programie uwzględniono przepływ rozpuszczalników, proporcje składników fazy ruchomej dla każdego cyklu pracy urządzenia i sekwencję działań automatycznego dozownika. Schemat zautomatyzowanego systemu SPE-HPLC przedstawiono na Rysunku 4.



Rysunek 4 Schemat zautomatyzowanego systemu SPE-HPLC online (A), zasada ekstrakcji i oczyszczania kolumny RAM (B), idea całej procedury SPE-HPLC (C) [15]

5. EKSTRAKCJA NADKRYTYCZNA

Bardzo dobrą metodą ekstrakcji analitów z ciał stałych jest ekstrakcja nadkrytyczna (ang. *Supercritical Fluid Extraction* – SFE) zgodna z zasadami zielonej chemii. Cechuje ją krótki czas stosowanej procedury, stosunkowo niskie zużycie energii i stosowanie bezpiecznych rozpuszczalników [16]. Automatyzacja w tej metodzie jest stosowana często. Analizowany materiał umieszcza się w komórce ekstrakcyjnej i programuje się warunki prowadzenia ekstrakcji. Otrzymany ekstrakt może być zebrany w fiolce do analizy off-line lub jest dozowany bezpośrednio do kolumny chromatograficznej.

SFE wykorzystano np. do przygotowania próbki do analizy połączonej z ultraszybką chromatografią ciekową (SFE-UHPLC). Oznaczano piperynę w czarnym pieprzu, używając jako medium ekstrakcyjne dwutlenku węgla [17]. Zastosowane do tego urządzenie zapewnia bezobsługową pracę z możliwością modyfikacji w celu przygotowania wielu próbek.

Zastosowanie ekstrakcji płynem nadkrytycznym jest alternatywą dla klasycznej rozpuszczalnikowej ekstrakcji analitów. Ponadto umożliwia ekstrakcję takich analitów, które mogą być wrażliwe na wysoką temperaturę lub pozostałości rozpuszczalnika [18].

6. PRZYKŁADY ROBOTÓW UŻYWANYCH DO PRZYGOTOWANIA PRÓBEK

Robot dwuramienny CSDA10F YASKWA ma dwa ramiona mogące symulować ruchy człowieka i jest przystosowany do pracy z różnymi urządzeniami laboratoryjnymi. Jest on zaprogramowany do obsługi różnych akcesoriów oraz może używać jednego ramienia np. do trzymania próbki i drugiego do wykonywania określonej czynności analitycznej. Roboty dwuramienne wykonują takie czynności, jakie wykonuje w laboratorium analityk, jednak z większą precyzją i dokładnością. Robot przygotowuje roztwory, potrafi rozcieńczać próbki, obsługuje dwie elektroniczne pipety z różnymi zakresami objętości, np. 5–200 μL i 50–1000 μL [19]. Robot potrafi samodzielnie użyć ręcznej pipety, szklanej fiolki czy umieścić próbkę w homogenizatorze. Po przygotowaniu próbki robot przenosi ją do przyrządu analitycznego. Każda analiza jest zaprogramowana i znajduje się w katalogu analiz. Dzięki temu do oznaczenia analitu

w określonej próbce wystarczy zastosować wcześniej zaprogramowaną procedurę. Na Rysunku 5 przedstawiono widok robota CSDA10F.



Rysunek 5 Robot dwuramienny CSDA10F (1) podnoszący pipetę, (2) LC/MS, (3) GC/MS, (4) półka z pipetami, (5) stanowisko przygotowywania próbek przed przeniesieniem ich do przyrządu analitycznego [19]

Graficzny interfejs użytkownika obrazuje poszczególne czynności, które robot musi wykonać po zaprogramowaniu przez analityka. Operator, dzięki przyjaznemu oprogramowaniu, nawet bez dużej wiedzy informatycznej może z powodzeniem zaprogramować procedurę analityczną. CSDA10F był stosowany np. do oznaczania proliny [19]. Robot dwuramienny SDA10F z jednostką sterującą FS100 (YASKAWA) (Rys. 6), wykorzystano np. do oznaczania cholesterolu w endoprotezie żółciowej za pomocą GC-MS [20]. Robot ten wykonuje wszystkie etapy przygotowania próbki zgodnie z procedurą ręczną, w tym między innymi rozcieńczanie próbki, filtrowanie, przenoszenie próbki oraz zadania automatycznego dozownika związane z dozowaniem próbki do przyrządu analitycznego [20].



Rysunek 6 Robot dwuramienny SDA10F podczas pipetowania za pomocą ręcznej pipety wielokanałowej [20]

7. PODSUMOWANIE

W laboratoriach analitycznych coraz powszechniej stosuje się automatyzację przygotowania próbek do analizy. Wykorzystuje się przy tym roboty, które w trybie on-line przenoszą próbki do przyrządu analitycznego, umożliwiając zwiększenie możliwości analitycznych laboratorium. Stosowanie automatyzacji i robotów umożliwia skrócenie procedur analitycznych i poprawę jakości wyników analiz. To ostatnie osiąga się przez ograniczenie błędów, które może popełnić analityk. Zaprogramowane i zautomatyzowane procedury analityczne są znacznie precyzyjniejsze niż procedury wykonywane w sposób manualny.

LITERATURA

- [1] Brzózka Z., Miniaturyzacja w analityce, Warszawa, Oficyna Wydawnicza Politechniki Warszawskiej, 2005, 13-40.
- [2] Witkiewicz Z., Kałużna-Czaplińska J., Podstawy chromatografii i technik elektromigracyjnych, Warszawa, PWN, 2017, 406-409.
- [3] Staniewski J., Niekonwencjonalne metody przygotowania próbek wodnych do oznaczeń chromatograficznych, LAB Laboratoria, Aparatura, Badania, 13 (2008) 6-13.
- [4] Namieśnik J., Szefer P., Preparing samples for analysis – the key to analytical success, Ecological Chemistry and Engineering S, 15 (2008) 167-244.

- [5] Wąchała A., Witkiewicz Z., *Automatyzacja instrumentalnych analiz chemicznych, Aparatura Badawcza i Dydaktyczna*, 4 (2018) 168-175.
- [6] Namieśnik J., *Nowe rozwiązania metodyczne w zakresie przygotowania próbek do analizy, Konferencja Chemików, Białystok, 20-21.05.2010 r.*
- [7] Marcinkowski Ł., Spietelun A., Kloskowski A., Namieśnik J., *Zastosowanie zielonych technik mikroekstrakcji (izolacji/wzbogacania) analitów z próbek środowiskowych. Nowe rozwiązania metodyczne i aparaturowe, Zastosowanie technik chromatograficznych w analizie środowiskowej i klinicznej, Łódź, 15-17.05.2013 r.*
- [8] Medina D., Cabal L., Lancas F., Santos-Neto A., *Sample treatment platform for automated integration of microextraction techniques and liquid chromatography analysis, HardwareX*, 5 (2019) 1-16.
- [9] Medina D., Cabal L., Titato G., Lancas F., Santos-Neto A., *Automated online coupling of robot-assisted single drop microextraction and liquid chromatography, J. Chromatogr. A*, 1595 (2019) 66-72.
- [10] Barker Ch., Tyagi M., Emory J., Defreitas N., *Fully Automated Sample Preparation and LC-MS Analysis of Drugs in Oral Fluid, Innov. Automat.*, 5 (2018) 18-19.
- [11] Barker Ch., *Fully automated LC-MS/MS Determination of Six Antiarrhythmic Drugs in Plasma, Innov. Automat.*, 5 (2018) 11.
- [12] Barker Ch., Kawakami D., Minohata T., *A 10-Steroid Serum Panel on LC-MS/MS Integrated With Fully Automated Sample Preparation, Innov. Automat.*, 5 (2018) 14-15.
- [13] Barker Ch., *CENTRI fully automated multi-mode sampling and preconcentration system for GC-MS, Anal. Sci.*, 71 (2018) 25, 34.
- [14] *Fully automated on-line headspace monitoring of VOCs from waste effluent by GC-FID and GC-TOF-MS, <https://theanalyticalscientist.com/app-notes/fully-automated-on-line-headspace-monitoring-of-vocs-from-waste-effluent-by-gc-fid-and-gc-tof-ms> [dostęp 10.05.2019].*
- [15] He J., Yuan J., Du J., Chen X., Zhang X., Ma A., Pan J., *Automated on-line SPE determination of amisulpride in human plasma using LC coupled with restricted-access media column, Microchem. J.*, 145 (2019) 154-161.
- [16] Essel V., Raynie D., *Green Chemistry Perspectives on Analytical Extractions, Supplement to LC GC Europe*, 31 (2013) 18-21.
- [17] Yamauchi T., Kamezawa K., Iwaya K., Sato Y., Miyaji T., Bounoshita M., Tognarelli D., Saito M., *Analysis of Piperine in Peppers Using On-Line SFE-UHPLC with Photodiode Array Detection, Amer. Laborat. website <https://www.americanlaboratory.com/914-Application-Notes/1110-Analysis-of-Piperine-in-Peppers-Using-On-Line-SFE-UHPLC-With-Photodiode-Array-Detection/> [dostęp 20.05.2019].*
- [18] Taylor L., *Analytical Supercritical Fluid Extraction Goes Back to Future, Green Chemistry Perspectives on Analytical Extractions, Supplement to LC GC Europe*, 5 (2014) 6-9.
- [19] Fleischer H., Baumann D., Joshi S., Chu X., Roddelkopf T., Klos M., Thurow K., *Analytical Measurements and Efficient Process Generation Using a Dual-Arm Robot Equipped with Electronic Pipettes, Energies*, 11 (2018) 1-21.
- [20] Fleischer H., Drews R. R., Janson J., Patlolla B., Chu X., Klos M., Thurow K., *Application of a Dual-Arm Robot in Complex Sample Preparation and Measurement Processes, J. Lab. Automat.*, 21 (2016) 671-681.