

Fig. 8 BER performance of the proposed system with DS and the conventional DS-UWB system in CM1.

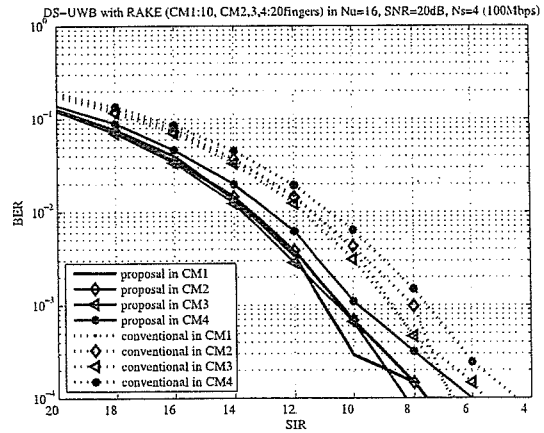


Fig. 10 SIR versus BER performance of the proposed system with DS and the conventional DS-UWB system in CM1, 2, 3 and 4.

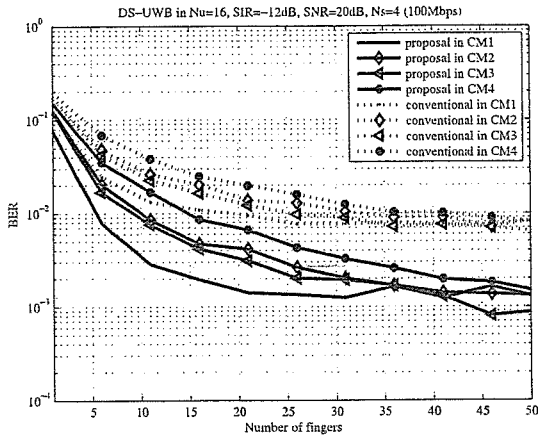


Fig. 9 Different number of RAKE fingers versus BER performance of the proposed system with DS and the conventional DS-UWB system in CM1, 2, 3 and 4.

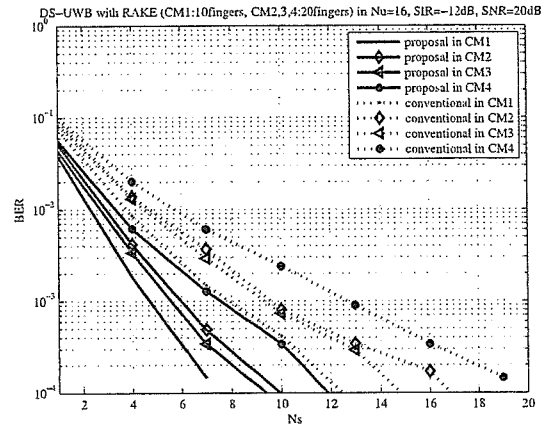


Fig. 11 N_s versus BER performance of the proposed system with DS and the conventional DS-UWB system in CM1, 2, 3 and 4.

correlation and low cross-correlation properties by employing LB-MMHP waveforms.

Figure 9 indicates the impact in performance of different number of RAKE fingers. We can see that around 10 fingers bring a modest performance in CM1, and around 20 fingers in CM2, 3 and 4. Additionally, the conventional system can not outperform our proposal even if the conventional system uses a large number of fingers in the RAKE receiver.

Figure 10 shows the impact in performance of different SIR levels. The gain of our proposal is around 2 dB in terms of SIR, and is independent from SIR level. So, our proposal outperforms the conventional system under both high SIR and low SIR situations.

Figure 11 shows the impact in performance of the processing gain N_s . As the processing gain N_s increases, the data information rate decreases. We can see that the proposed system offers good performance for both the high data rate and low data rate cases.

4.3 Effect of Proposed Scheme for Reducing NBI (Co-existence between UWB System and Other Systems)

UWB communication systems need to coexist with other systems [14]. For example, UWB-WPAN systems that occupy the frequency band from 3.1 GHz to 10.6 GHz might be interfered by WLAN systems in the 5 GHz-band.

Nevertheless, we can adopt proper countermeasures against this problem. The spectrum of the LB-MMHP has some notches (see Fig. 3). If a notch is placed in the 5 GHz-band, NBI can be reduced. Therefore, our proposed system uses only LB-MMHP of suitable orders, in the case of co-existence. Figure 12 shows the power spectral density of LB-MMHP with suitable orders, such that notches are formed in the 5 GHz band of WLAN systems.

Figure 13 shows the characteristics of the bit error rates of the proposed system and the conventional DS-UWB system when we vary from the desired to the undesired ratio (DUR) by changing from 0 dB to -30 dB. DUR is given by

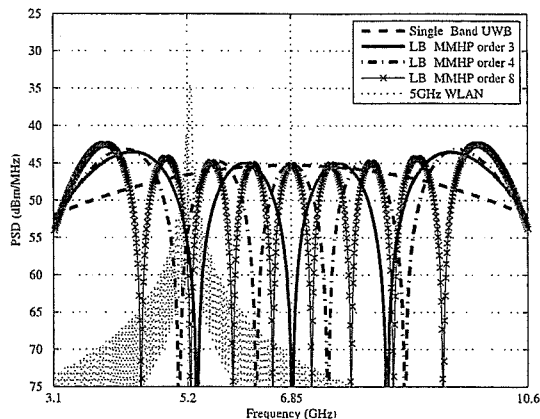


Fig. 12 The power spectral density of the LB-MMHP of order 3, 4 and 8, the single-band pulse and WLAN system (5 GHz-band, $DUR = 0$ dB).

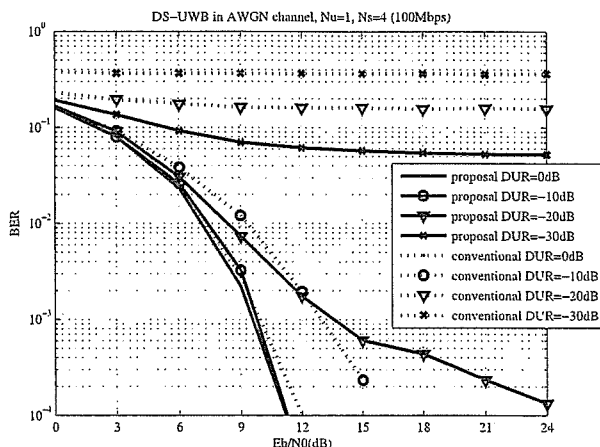


Fig. 13 The bit error rate of the proposed system and the conventional DS-UWB system in the case of co-existence with 5 GHz WLAN system in AWGN channel.

$$DUR = \frac{\int_0^{T_b} |s^{(k)}(t)|^2 dt}{\int_0^{T_b} |v_n(t)|^2 dt}, \quad (16)$$

where $v_n(t)$ is a narrow band interference signal, and we apply OFDM signals implemented in IEEE802.11a as $v_n(t)$ in our simulations. Additionally, T_b is the duration of UWB signal for 1 bit. We can see that the proposed system outperforms the conventional DS-UWB system in terms of the bit error rate, especially in the case of $DUR = -10, -20$ dB.

5. Conclusions

We proposed the UWB communication system for reducing various interferences. We designed a novel pulse set called *LB-MMHP set* to comply with the FCC spectral mask. We confirmed that our proposed system outperforms the conventional DS-UWB systems in terms of the bit error rate. Our proposed pulse shape hopping scheme can reduce effects of MUI and ISI effectively. Additionally, the problem of co-existence between UWB systems and WLAN systems

is solved by using notches of the proposed LB-MMHP.

The performance evaluation with other waveforms, and the effect of timing jitter, will be studied as future research.

References

- [1] M.Z. Win and R.A. Scholtz, "Ultra-wide bandwidth time-hopping spread-spectrum impulse radio for wireless multiple-access communications," *IEEE Trans. Commun.*, vol.48, no.4, pp.679–691, April 2000.
- [2] J. Foerster, "The performance of a direct-sequence spread ultra-wideband system in the presence of multipath, narrowband interference and multiuser interference," *Proc. IEEE Conf. Ultra Wideband Systems and Technologies*, Digest of Papers, pp.87–91, Baltimore, MD, May 2002.
- [3] Q. Li and L.A. Rusch, "Multiuser detection for DS-SS UWB in the home environment," *IEEE J. Sel. Areas Commun.*, vol.20, no.9, pp.1701–1711, Dec. 2002.
- [4] J. Foerster, V. Somayazulu, S. Roy, E. Green, K. Tinsley, C. Brabenec, D. Leeper, M. Ho, and Intel, "Intel's multi-band UWB PHY proposal for IEEE 802.15.3a," *IEEE P802.15 Wireless Personal Area Networks*, P802.15-03/109r1, March 2003.
- [5] G. Durisi, J. Romme, and S. Benedetto, "Performance of TH and DS UWB multiaccess systems in presence of multipath channel and narrowband interference," *Proc. IWUWBS 2003*, Oulu, Finland, June 2003.
- [6] R.A. Scholtz, "Multiple access with time hopping impulse modulation," *Proc. Military Communications Conference (MILCOM'93)*, pp.447–450, Boston, MA, Oct. 1993.
- [7] G. Durisi and G. Romano, "On the validity of gaussian approximation to characterize the multiuser capacity of UWB TH-PPM," *Proc. IEEE Conf. Ultra Wideband Systems and Technologies*, Digest of Papers, pp.157–161, Baltimore, MD, May 2002.
- [8] M. Ghavami, L.B. Michael, S. Haruyama, and R. Kohno, "A novel UWB pulse shape modulation system," *Wirel. Pers. Commun.*, vol.23, no.1, pp.105–120, Oct. 2002.
- [9] X. Wu, Z. Tian, T.N. Davidson, and G.B. Giannakis, "Optimal waveform design for UWB radios," *Proc. ICASSP 2004*, pp.521–524, Quebec, Canada, May 2004.
- [10] G.T.F. de Abreu, C.J. Mitchell, and R. Kohno, "On the orthogonality of hermite pulses for ultra wideband communications systems," *Proc. Wireless Personal Multimedia Conf. (WPMC'03)*, pp.288–292, Yokosuka, Japan, Oct. 2003.
- [11] M. Ghavami, L. Michael, and R. Kohno, *Ultra Wideband Signals and Systems in Communication Engineering*, John Wiley & Sons, 2004.
- [12] L.B. Michael, M. Ghavami, and R. Kohno, "Multiple pulse generator for ultra-wideband communication using hermite polynomial based orthogonal pulses," *Proc. IEEE Conf. Ultra Wideband Systems and Technologies*, Digest of Papers, pp.47–51, Baltimore, MD, May 2002.
- [13] H. Harada, T. Sato, and R. Kohno, "Multivalued transmission system for UWB-CDMA using modified hermite pulse shape," *Proc. IEEE Topical Conf. Wireless Communication Technology*, pp.451–452, Honolulu, HI, Oct. 2003.
- [14] X. Chu and R.D. Murch, "The effect of NBI on UWB time-hopping systems," *IEEE Trans. Wirel. Commun.*, vol.3, no.5, pp.1431–1436, Sept. 2004.
- [15] X. Luo, L. Yang, and G.B. Giannakis, "Designing optimal pulse-shapers for ultra-wideband radios," *J. Commun. Netw.*, vol.5, no.4, pp.344–353, Dec. 2003.
- [16] J.D. Choi and W.E. Stark, "Performance of ultra-wideband communications with suboptimal receivers in multipath channels," *J. Commun. Netw.*, vol.20, no.9, pp.1754–1766, Dec. 2002.
- [17] G. Durisi, A. Tarable, J. Romme, and S. Benedetto, "A general method for error probability computation of uwb systems for in-

door multiuser communications," *J. Commun. Netw.*, vol.5, no.4, pp.354–364, Dec. 2003.

- [18] J. Foerster, Q. Li, and Intel, "Channel modeling sub-committee report final," IEEE P802.15 WG for WPANs Technical Report, P802.15-02/490r1-SG3a, Feb. 2003.
- [19] A. Shlivinski, E. Heyman, and R. Kastner, "Antenna characterization in the time domain," *IEEE Trans. Antennas Propag.*, vol.45, no.7, pp.1140–1149, July 1997.
- [20] M. Hernandez and R. Kohno, "Signal design for high data rate DS-UWB transmissions in MIMO channels," *Proc. IEEE International Conf. on Wireless Networks, Communications, and Mobile Computing*, pp.1214–1219, Maui, Hawaii, USA, 2005.
- [21] H. Harada, K. Ikemoto, and R. Kohno, "Modulation and hopping using modified hermite pulses for UWB communications," *Proc. IEEE International Workshop on UWB Systems Joint with Conf. UWB Systems and Technologies*, pp.336–340, Kyoto, Japan, May 2004.
- [22] G. Ono, T. Nakagawa, A. Maeki, R. Fujiwara, T. Norimatsu, K. Mizugaki, M. Miyazaki, M. Kokubo, Y. Okuma, M. Hayakawa, S. Kobayashi, N. Koshizuka, and K. Sakamura, "3-nw/bps low power UWB system (3): Development of RF front end," *Symposium of the IEICE Society of Communications*, p.134, Sapporo, Japan, Sept. 2005.



Fellow.

Hiroki Harada received the M.E. degree in electrical and computer engineering from Yokohama National University, Yokohama, Japan, in 2005. He is currently working toward the Ph.D. degree in electrical and computer engineering at Yokohama National University, Yokohama, Japan. He is also Research Fellow of the Japan Society for the Promotion of Science. His research interests lie in the area of ultra wideband communication and information theory. He is a student member of IEEE. He is JSPS Research



Ryuji Kohno received the Ph.D. degree from the University of Tokyo in 1984. Dr. Kohno is currently a Professor of the Division of Physics, Electrical and Computer Engineering, and the Director of Center on Medical Information and Communication Technology, in Yokohama National University. In his career he was a director of Advanced Telecommunications Laboratory of SONY CSL during 1998–2002 and currently a director of UWB Technology institute of National Institute of Informa-

tion and Communications Technology (NICT). In his academic activities, he was elected as a member of the Board of Governors of IEEE Information Theory (IT) Society in 2000 and 2003. He has played a role of an editor of the IEEE Transactions on IT, Communications, and Intelligent Transport Systems (ITS). He has been vice-president of Engineering Sciences Society of IEICE, the Chairman of the IEICE Technical Committee on Spread Spectrum Technology, that on ITS, and that on Software Defined Radio (SDR). Prof. Kohno has contributed for organizing many international conferences, such as an chair-in honor of 2002 & 2003 International Conference of SDR (SDR'02 & SDR'03), a TPC co-chair of 2003 International Workshop on UWB Systems (IWUWBS'03), and a general co-chair of 2003 IEEE International Symposium on IT (ISIT'03), UWBST&IWUWB'04, IWUWBS'05 and so on. He was awarded IEICE Greatest Contribution Award and NTT DoCoMo Mobile Science Award in 1999 and 2002, respectively.

TDOA 型センサネットワークにおける階層型粒子フィルタを用いた
位置推定法谷口健太郎^{†a)} 河野 隆二^{†b)}Positioning Algorithm Based on TDOA Measurements Using Layered Particle
Filter in Sensor NetworkKentaro TANIGUCHI^{†a)} and Ryuji KOHNO^{†b)}

あらかし センサネットワークにおいて、個々のセンサタグの位置情報を正確に把握することは非常に重要である。センサタグの測位方式としては、信号の受信時刻差 (Time Difference of Arrival: TDOA) を利用した測位システムが知られているが、従来の線形探索アルゴリズムではマルチパスフェージングや見通し外伝搬路の影響で大幅に測位精度が劣化してしまう。本論文では、このような劣悪な伝搬環境においても信頼性の高い測位を実現する方式として、階層型粒子フィルタを用いた測位アルゴリズムを提案する。提案方式では、複数の基地局ノードが測位対象であるセンサタグからの信号を受信し、二階層にわたって粒子フィルタによる状態量推定を実行する。第一階層では、基地局ノードで得られた個々の TDOA 観測値に対し、粒子フィルタを用いてマルチパス補償を行う。この際、非ガウス状態空間モデルを利用することにより、見通し外伝搬路に起因する測定異常値を効果的に除去することが可能となる。続いて第二階層では、修正された全 TDOA 観測値を用いて、粒子フィルタによる位置推定を行う。第一階層での観測値補正により、最終的に得られる測位精度が大幅に改善されることを示す。また計算機シミュレーションにより、提案アルゴリズムが従来方式に比べてより高精度で、見通し外環境に対してもロバストな測位を実現できることを示す。

キーワード 位置検出, トラッキング, TDOA, 粒子フィルタ, センサネットワーク

1. まえがき

無線センサネットワークは、近未来のコビキタス社会を形成するコアテクノロジーとして盛んに研究が進められている [1]。無線センサネットワークにおいて、個々のセンサタグの正確な位置を知ることは非常に重要である。位置情報のないセンシングデータは意味をなさない [2], [3]。

測位技術として広く普及したものに GPS (Global Positioning System) システムが挙げられるが、GPS は微弱な電波を利用するため、屋内や都心の密集エリアでは十分な測位精度を得ることが難しい。このような劣悪な環境でも有効に機能し、GPS に依存しない

汎用性の高い測位技術への要求が高まっている。

また、センサネットワークでは個々のセンサタグはできるだけ簡易なハードウェア構成が望まれる。したがって、測位に要する信号処理はインフラ側で実行されることが好ましい。信号の受信時刻差 (Time Difference of Arrival: TDOA) を利用する測位方式は、このようなニーズを満たす技術として大きな注目を浴びている [4]~[6]。TDOA に基づく測位では、複数の基地局ノードで観測された信号の受信時刻の差を利用して測位を行う。測位に際して、タグでの送信時刻情報を必要とせず、時刻同期は基地局ノード同士のみで要求される。したがって、移動体であるセンサタグは簡易性・独立性・低消費電力性といった特徴を有することができる。このような観点から TDOA に基づく測位は、センサネットワークに適した方式といえる。

本論文では、室内を移動するタグからの信号を、あらかじめ位置の分かっている複数の基地局ノードで受信し、測位を行うシステムを想定する。基地局ノード

[†] 横浜国立大学大学院工学府, 横浜市

Graduate School of Engineering, Yokohama National University, 79-5 Tokiwadai, Hodogaya, Yokohama-shi, 240-8501 Japan

a) E-mail: kentarou@kohnolab.dnj.ynu.ac.jp

b) E-mail: kohno@ynu.ac.jp

は、得られた受信時刻情報を外部基地局、若しくはマスタノードに送信し、そこでタグの測位やトラッキングを実行する。

TDOA を利用した測位は、マルチパスフェージングや見越し外 (Non-Line-of-Sight : NLOS) 伝搬によって大幅に精度が劣化してしまうことが知られている。このような位置検出は、不確かな時刻情報に基づく非線形問題となる。従来からあるニュートン法などの線形探索アルゴリズムは、TDOA 観測値に含まれる測定誤差によって大きな影響を受けてしまう [10]。

仮に正確な伝搬路情報が得られるのであれば、これらの見越し外伝搬に起因する測定誤差を補償することが可能である [6]。しかしながら、一般に伝搬路情報を正確に得ることは難しく、伝搬路の推定も容易ではない。

マルチパスや NLOS 伝搬に起因する問題への対策として、本論文では粒子フィルタを利用した新しい測位アルゴリズムを提案する [7], [8]。粒子フィルタは一般にモンテカルロフィルタとしても知られ、非線形状態モデルに対する状態量推定アルゴリズムの一つである [11]。TDOA 型システムを含め、様々な測位・測距アプリケーションへの粒子フィルタの適用が検討されているが、マルチパスや NLOS 伝搬への対策は十分にされていない [5], [12]。粒子フィルタによって伝搬遅延を推定する方式も知られているが、タグと基地局間の時刻同期がとれていなければならず、TDOA 型の測位システムへの適用は難しい [14]。

TDOA 型測位システムにおける NLOS 伝搬の影響を軽減するため、本論文では、階層型粒子フィルタを提案する。提案方式では、二階層の粒子フィルタを用いてタグの位置検出を行う。第一階層では、基地局ノードで観測された TDOA 値のそれぞれに対して、粒子フィルタによるマルチパス補償を行う。個々の観測値には、NLOS 伝搬に起因する測定誤差が含まれるため、粒子フィルタによる状態量推定によって、真の TDOA 値への補正を行う。第一階層での状態量推定に際しては、非ガウシアンの状態空間モデルを用いる。裾の重い非ガウス分布を観測ノイズとしてモデル化することで、高い確率で現れる小さいノイズと、低い確率で現れる大きな観測誤差の両方を表現することが可能となる [16]。このような 2 種類のノイズは、実際の観測値に含まれる AWGN (Additive White Gaussian Noise) 成分と、NLOS 伝搬に起因して現れる異常値とに対応づけることができる。従来あるカルマンフィルタで

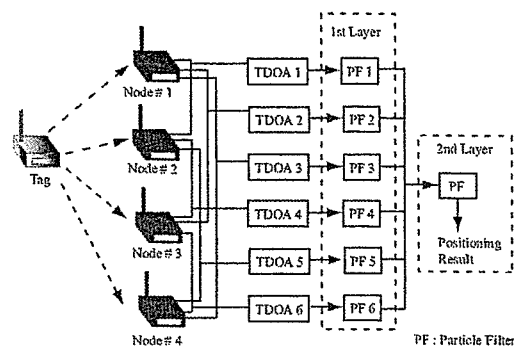


図 1 階層型粒子フィルタを用いた測位システム
Fig. 1 Positioning system using layered particle filter.

は、このような非線形かつ非ガウスモデルへの状態量推定は不可能であった。提案方式では、一つひとつの TDOA 観測値に対して、粒子フィルタによる推定を行うことで、推定する状態量ベクトルの次元を増やすことなく、効果的に異常値を除去することが可能となる。

第二階層では、第一階層を通して修正されたすべての TDOA 情報を利用して、センサタグの位置推定を行う。この階層ではタグの座標を状態量としてとらえ、粒子フィルタによる状態量推定を行う。提案する測位システムの概要を図 1 に示す。従来からある粒子フィルタによる測位システムは、第一階層を省いて第二階層のみで測位を行うアルゴリズムといえる。この場合、複数得られた TDOA 観測値のうち、大きな誤差を含む観測値の影響を強く受け、効果的な測位精度を得ることができない。提案方式では、第一階層でのマルチパス補償によって、第二階層での測位精度が大幅に改善され、最終的に理論的下限に近い精度を実現することが可能となる。

本論文では、TDOA 型測位システムについて、実環境に即した伝搬モデルを検討する。劣悪な環境下でも、信頼性の高い測位を実現する階層型粒子フィルタを提案し、その設計・解析を行う。以下、2. では想定する測位システムモデルについて述べる。3. では提案する階層型粒子フィルタのアルゴリズムを詳細に述べる。4. では計算機シミュレーション及び理論解析を通して、提案システムがロバストで高精度な測位を実現できることを示す。

2. 測位システムモデル

2.1 TDOA に基づく測位

本節では、TDOA に基づく測位方式の概要を述べ

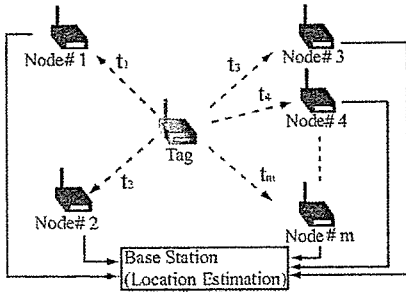


図2 測位システムモデル。移動体タグの座標は未知、 m 個のノードの位置は既知。
Fig.2 Positioning system model. The location of mobile tag is unknown. The locations of m nodes are known.

る。本論文で想定する測位システムモデルを図2に示す。センサとしては、あらかじめ位置の分かっているセンサノードと、位置の分からないセンサタグを定義する。これらのセンサを以後は“ノード”及び“タグ”とそれぞれ呼ぶこととする。複数のノード $P_i[x_i, y_i]$, $i = 1, \dots, m$ においてタグからの信号を受信し、受信時刻の差を利用してタグの座標 $P_0[x_0, y_0]$ を推定する。各ノードでの受信時刻情報は、外部サーバ若しくはマスタノードに転送され、測位計算が行われる。転送に際しての遅延や信号消失は考えないものとする。また、本論文では位置座標として二次元座標を検討するが、三次元であったとしても一般性は失われない。

TDOA システムでは、タグとノード間の時刻同期を必要としないことから、タグまでの距離情報は、二つのノードでの受信時刻を比較することで得られる。

$$\Delta d_k (\equiv \Delta d_{ij}) = d_i - d_j = c(\tau_i - \tau_j), \quad k = 1, 2, \dots, K \quad (1)$$

$$i \in (1, m-1), \quad j \in (2, m), \quad i < j$$

ここで c は光速、 d_i はノード # i とタグとの間の距離、そして $\tau_i = d_i/c$ はノード # i での信号受信時刻である。更に、 m は基地局ノードの総数であり、添字 k は全部で $K = {}_m C_2$ 通りの組合せを有するノード組をカウントするインデックスである。

$$d_i = \sqrt{(x_i - x_0)^2 + (y_i - y_0)^2} \quad (2)$$

$$k = (j - i) + \sum_{l=0}^{i-1} (m - l) = -\frac{i^2}{2} + \left(m - \frac{1}{2}\right)i + j - m \quad (3)$$

$$K = \binom{m}{2} \quad (4)$$

m 個のノードでの観測結果に基づいて得られる K 個の TDOA 値は、マスタノードへ転送され、非線形連立 K 次方程式を解くことで、測位結果が算出される。

2.2 伝搬環境モデル

個々のノードでの観測値に誤差が含まれなければ、三つのノードでの観測によってタグの二次元座標は正確に算出される。しかし一般には、マルチパスフェージングや NLOS 伝搬によってそのような仮定は成り立たず、特に屋内環境や市街地では深刻な測定誤差が観測値に含まれてしまう。したがって、ノード # i での信号受信時刻 $\hat{\tau}_i$ は以下のように書き表す必要がある。

$$\hat{\tau}_i = \tau_i + \tau_n^i + \tau_N^i \quad (5)$$

ここで τ_n と τ_N はそれぞれ AWGN 及び NLOS 伝搬に起因する測定誤差を表す。これらのうち、特に後者の τ_N が、受信時刻情報に含まれる大きな誤差となる。信号の受信時刻 (Time Of Arrival: TOA) 情報を用いる測距・測位システムのように、タグでの信号送信時刻が正確に得られるのであれば、 τ_N は真の伝搬時間 τ_i に加算された正のバイアスととらえることが可能である。しかし TDOA 型のシステムでは、測定可能な情報は「各ノードでの信号受信時刻の差」のみであるため、観測値に含まれる NLOS 誤差成分が、真の TDOA 値に加算された正のバイアスととらえることはできない。実際に観測される TDOA 値 ($\hat{\tau}_i - \hat{\tau}_j$) に光速 c を掛けることによって、距離情報が以下のように算出される。

$$\begin{aligned} \Delta \hat{d}_k &= c(\hat{\tau}_i - \hat{\tau}_j) \\ &= c(\tau_i - \tau_j) + c(\tau_n^i - \tau_n^j) + c(\tau_N^i - \tau_N^j) \\ &= \Delta d_k + \Delta d_n^k + \Delta d_N^k \end{aligned} \quad (6)$$

ここで Δd_n^k 及び Δd_N^k は上記の τ_n と τ_N に関連する項であり、それぞれ AWGN 及び NLOS 伝搬に起因する測定誤差を表す。なお、セルラ系のような規模の大きなネットワークにおいては、TDOA 情報を算出する際に、各ノードでの受信信号の相互相関を利用する方法が知られている。本論文では、センサネットワークにおけるハードウェア面での制約をかんがみ、TDOA 情報はノードでの受信時刻の差によってのみ算出されるものとする。

式 (6) で示されるように、算出される距離情報 $\Delta \hat{d}_k$

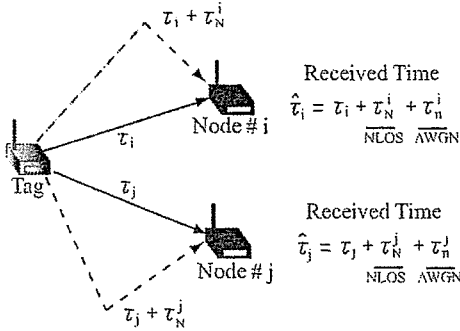


図 3 伝搬環境モデル
Fig. 3 Propagation environment model.

は、2種類の誤差項 Δd_n^k , Δd_N^k の影響によって、真の距離情報 Δd_k に対して大きく変動することとなる。これらの誤差項は、個々のノードでの受信時刻情報に含まれる2種類の独立した誤差成分 (τ_n^i 及び τ_N^i) を用いて以下のように表される。

$$\Delta d_n^k = c \cdot (\tau_n^i - \tau_n^j) \quad (7)$$

$$\Delta d_N^k = c \cdot (\tau_N^i - \tau_N^j) \quad (8)$$

式 (7) における $c\tau_n^i$ は、受信ノードの RF 雑音やクロックオフセット等に起因する AWGN 成分であり、ガウス分布 $\mathcal{N}(0, \sigma^2)$ でモデル化する。式 (8) における $c\tau_N^i$ は NLOS 伝搬に起因する異常値であり、指数分布 $\mathcal{E}(\lambda, \lambda^2)$ でモデル化する。その確率密度分布は次式で表される。

$$P(c\tau_N^i; \lambda, \lambda^2) = \frac{1}{\lambda} \cdot \exp\left(-\frac{c\tau_N^i}{\lambda}\right) \quad (9)$$

本論文では、測位に際しての伝搬環境を上記二つのパラメータ σ^2 及び λ によって特徴づける。なお、各ノードでの観測値は互いに独立であるとする。伝搬環境モデルを図 3 に示す。従来の研究では、観測モデルは AWGN 成分のみであったり、若しくは指数分布に基づく伝搬遅延モデルが受信側で既知であったりした [4]~[6]。一方で、本研究における観測値のモデル化は、2種類の誤差成分を含めることでより実環境に即したものとなっており、位置検出は強い非線形性を有する問題となる。

2.3 測位・追跡のための状態空間モデル

高精度な測位を実現するためには、伝搬路環境を正確に知ることが望ましい。しかしながら、一般に伝搬路特性は時変であり、伝搬環境はタグの移動によって変化すると考えることが妥当である。

時変なシステムの状態を表す手段としては、状態空間モデルが有効である。一般に、状態空間モデルは次式で表される。

$$\mathbf{x}_t = \mathbf{F}\mathbf{x}_{t-1} + \mathbf{G}\mathbf{v}_t \quad (10)$$

$$\mathbf{y}_t = \mathbf{H}\mathbf{x}_t + \mathbf{w}_t \quad (11)$$

ここで式 (10) は状態遷移方程式であり、式 (11) は観測方程式である。式 (10) において、 \mathbf{x}_t は状態量ベクトル、 \mathbf{v}_t はシステムノイズベクトルである。行列 \mathbf{F} 及び \mathbf{G} はシステム行列である。式 (11) において、 \mathbf{y}_t は観測ベクトルであり \mathbf{w}_t は観測ノイズベクトルである。行列 \mathbf{H} は観測行列である。ノイズベクトルやシステム行列を、着目しているシステムに合わせて適切に設計することで、効果的な状態量推定を行うことが可能となる。

状態空間モデルによって表される状態量を推定するアルゴリズムとして、粒子フィルタが知られている [11], [15]。従来からある粒子フィルタを用いた測位アルゴリズムは、NLOS 伝搬といった実環境を考慮していなかったり、若しくは TDOA 型に不向きな状態空間モデルを用いていた [13]。本論文では、「実環境に即した TDOA 型測位を実現する」という目的のもと、粒子フィルタによる信号処理を二階層のプロセスに分離し、それぞれの階層において適切な状態空間モデルの検討を行った。アルゴリズムの詳細を次章で述べる。

3. 階層型粒子フィルタアルゴリズム

提案する階層型粒子フィルタは、二階層、すなわち二段階の状態量推定を行う。第一階層での推定は、NLOS 伝搬に起因する大きな誤差を観測値から取り除き、真の値への補正を行うためのプロセスである。第二階層は測位のためのプロセスである。

3.1 第一階層：観測値補正

3.1.1 第一階層での状態空間モデル

第一階層では、 K 個の TDOA 観測値に基づいた距離情報 $\Delta \hat{d}_k(t)$, $k = 1, \dots, K$ から誤差成分を除去し、真の値 $\Delta d_k(t)$ への補正を行うために粒子フィルタを適用する。状態量ベクトル \mathbf{x}_t の要素の一つとして、距離情報 $\Delta d_k(t)$ を与える。この、 $\Delta d_k(t)$ は、式 (1) に表されるとおり、時刻 t におけるタグから二つのノードまでの距離の差を指す。本論文では、タグの移動は一定速度 ($V = 1$ [m/s]) を保つものとする。このような仮定のもとでは、距離情報 $\Delta d_k(t)$ の時間変化も緩やかであるため次式が近似的に成立する。

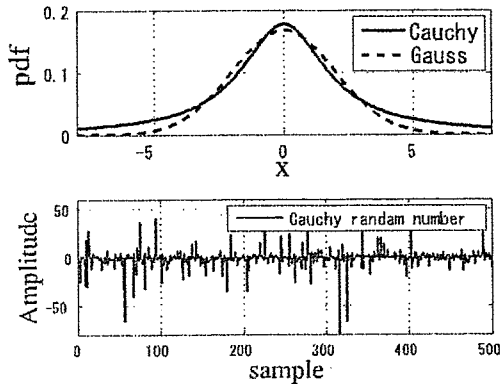


図4 (上) コーシー分布とガウス分布の比較. (下) コーシー乱数. ($\eta^2 = 4$: Cauchy, $\nu^2 = 4$: Gaussian)
 Fig. 4 (Top) Comparison between Cauchy distribution and Gaussian Distribution. (Bottom) Cauchy random number. ($\eta^2 = 4$ for Cauchy, $\nu^2 = 4$ for Gaussian)

$$\Delta d_k(t+1) = 2\Delta d_k(t) - \Delta d_k(t-1) \quad (12)$$

状態量推定においては、システムノイズベクトル \mathbf{v}_t 及び観測ノイズベクトル \mathbf{w}_t の適切なモデル化が重要である。本論文では、タグの移動が緩やかで急激な位置の変化がないとしているため、システムノイズとしてガウス分布 $\mathcal{N}(0, \nu^2)$ を与える。

一方、観測誤差を適切にモデル化することは容易ではない。式(6)~(8)で表されるように、TDOA測定値は2種類の誤差成分 $\mathcal{N}(0, \sigma^2)$ 及び $\mathcal{E}(\lambda, \lambda^2)$ によってひずんだものとなる。このような誤差成分を正確に推定することは困難であるため、第一階層では観測ノイズとしてコーシー分布 $\mathcal{C}(0, \eta^2)$ を適用する。コーシー分布 $\mathcal{C}(0, \eta^2)$ の確率密度分布は次式で与えられる。

$$r(x; 0, \eta^2) = \frac{\eta}{\pi(x^2 + \eta^2)} \quad (13)$$

図4より、コーシー分布 $\mathcal{C}(0, \eta^2)$ は裾の広がった非ガウス分布であり、高い確率で出現する観測ノイズと、低い確率で出現する異常値をともに表現することが可能であると分かる。一般に、劣悪な伝搬環境においては、NLOS伝搬に起因した異常値が観測値に不定期に現れてしまう。このような異常値を検出・訂正するための観測ノイズのモデルとして、コーシー分布は適しているといえる。

状態量推定に二つのノイズモデル(システムノイズ $\mathcal{N}(0, \nu^2)$ 及び観測ノイズ $\mathcal{C}(0, \eta^2)$)を用いるにあたって、それらのパラメータ(すなわち ν^2 及び η^2)を決定しなければならない。しかしながら、これらの

ノイズモデルが実際の伝搬環境と一致するとは限らないため、そのパラメータについても適切な値を事前に把握することは難しい。また、伝搬環境が時間によって変動することも容易に想定できるため、これらのパラメータを随時、適切な値に変えることが望ましい。したがって、本論文では、ノイズモデルのパラメータの時間変動も考慮に入れ、その遷移を状態空間モデルに組み込んでいる。モデルパラメータの遷移方程式は次式で与えられる。

$$\nu^2(t) = \nu^2(t-1) + v_{\nu^2}(t) \quad (14)$$

$$\eta^2(t) = \eta^2(t-1) + v_{\eta^2}(t) \quad (15)$$

ここで $v_{\nu^2}(t)$ 及び $v_{\eta^2}(t)$ は、二つのパラメータ $\nu^2(t)$ 及び $\eta^2(t)$ を随時修正するための補正量を表す。これらの遷移モデルを組み込むことで、状態空間モデルで用いるシステムノイズと観測ノイズのパラメータを随時適応的に補正していくことが可能となる。したがって、状態量推定の際に与える初期パラメータが実際の伝搬環境から大幅にずれていたとしても、推定プロセスを経て徐々に真の値へと修正されていくこととなる。本論文では、二つの伝搬環境パラメータ σ^2 及び λ が時間や場所によらず一定とみなしているが、これらの値が変動するような環境においては、提案方式の状態空間モデルの有効性がより強固なものとなる。

以上の議論により、第一階層での状態空間モデルの全要素は以下のようになる。

$$\mathbf{x}_t = [\Delta d(t), \Delta d(t-1), \eta^2(t), \nu^2(t)]^T \quad (16)$$

$$F = \begin{bmatrix} 2 & -1 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (17)$$

$$G = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (18)$$

$$H = [1 \ 0 \ 0 \ 0] \quad (19)$$

$$\mathbf{v}_t = [v_d(t), v_{\eta^2}(t), v_{\nu^2}(t)]^T \quad (20)$$

$$\mathbf{w}_t = w_d(t) \quad (21)$$

上記状態空間モデルは、個々の距離情報 $\mathbf{y}_t = \Delta \hat{d}_k(t)$, $k = 1, \dots, K$ それぞれに適用される。ここで K はTDOA観測値の総数であり、式(4)のように表され

る。式 (16), (20), (21) 及び以後の議論においては、簡易のため添字 k を省略する。観測値 y_t を用いて未知の状態ベクトル x_t を逐次的に推定する手段として、粒子フィルタを適用したアルゴリズムを次節で示す。

3.1.2 第一階層における粒子フィルタを用いた状態量推定

粒子フィルタは、モンテカルロ法に基づく統計的信号処理を逐次的に実行するための実装アルゴリズムの一つである [15]。非線形性・非ガウス性を有するモデルに対しても、効果的に状態量推定を行えるという特徴を有する。したがって、従来のカルマンフィルタでは用いることのできなかつた非ガウスモデルを観測ノイズとして適用することができる。また、モデルパラメータの時間遷移を組み入れた非線形な状態空間モデルに適用することも可能である。

時刻 t における観測値ベクトルを $Y_t = \{y_0, \dots, y_t\}$ と表すとき、状態量推定の目的は、事後確率分布 $p(x_t|Y_t)$ を算出することにある。粒子フィルタはこの分布を N 個の粒子を用いて近似的に実現する。この状態量推定は、一期先予測とフィルタリングのプロセスを以下のように繰り返すことで実行される。このプロセスは K 個の観測値のそれぞれに対して行われ、その結果、個々の距離情報 $y_t = \Delta \hat{d}_k$, $k = 1, \dots, K$ が修正される。なお、ここでの「観測値」とは、ノードでの観測によって得られた TDOA 値に光速を乗算した距離情報 $\Delta \hat{d}_k$ を指す。

- STEP1: 初期分布に従う粒子の生成

初期分布 $p_0(x) = \mathcal{N}(\Delta \hat{d}(1), \nu^2(0))$ に基づいて、 N 個の粒子、すなわち N 個のランダムベクトルを生成する。個々の粒子の初期状態は以下のような状態ベクトルで表される。

$$f_0^{(i)} = [p_0(x), p_0(x), \eta^2(0), \nu^2(0)]^T, \quad (i = 1, \dots, N) \quad (22)$$

- STEP2: 以下のフィルタリングのプロセスを繰り返す

- STEP2-1: システムノイズに従う粒子の生成
更に別の N 個の粒子を生成する。これらの粒子群は、次式で表されるシステムノイズベクトルを表現する。

$$v_t^{(i)} = [v_d^{(i)}(t), v_{\eta^2}^{(i)}(t), v_{\nu^2}^{(i)}(t)], \quad i = 1, \dots, N \quad (23)$$

ここで、システムノイズとしてはガウス分布を仮定する。したがって

$$v_t^{(i)} = [\mathcal{N}(0, \nu^2(t-1)), \mathcal{N}(0, \rho^2), \mathcal{N}(0, \xi^2)] \quad (24)$$

ここで ρ 及び ξ は $v_{\eta^2}(t)$ と $v_{\nu^2}(t)$ の標準偏差である。

- STEP2-2: 一期先予測

式 (25) で表される状態遷移方程式を用いて、事後分布 $p(x_t|Y_{t-1})$ に従う粒子群 $p_t^{(i)}$ を算出する。

$$p_t^{(i)} = Ff_{t-1}^{(i)} + Gv_t^{(i)}, \quad i = 1, \dots, N \quad (25)$$

- STEP2-3: 粒子 $p_t^{(i)}$ のゆが度の算出
観測値 y_t 及び観測ノイズ分布を用いて、個々の粒子 $p_t^{(i)}$ のゆが度 $\alpha_t^{(i)}$ を算出する。

$$\alpha_t^{(i)} = r(y_t - Hp_t^{(i)}; 0, \eta^2(t)), \quad i = 1, \dots, N \quad (26)$$

ここで $r(x; 0, \eta^2(t))$ は式 (13) で表されるコーシー分布の確率密度分布である。なお、第一階層では観測値 $y_t = \Delta \hat{d}_k$, $k = 1, \dots, K$ の一つひとつに対して状態量推定を行うため、観測ベクトル y_t は、サイズが (1×1) のスカラー量となる。

- STEP2-4: フィルタ分布の算出

式 (27) で表される確率に従って、粒子 $p_t^{(i)}$ をリサンプリングする。この結果、一期先の状態量を表現する粒子群 $f_{t+1}^{(i)}$ を得る。

$$\Pr(f_{t+1}^{(i)} = p_t^{(i)}) = \frac{\alpha_t^{(i)}}{\alpha_t^{(1)} + \dots + \alpha_t^{(N)}}, \quad i = 1, \dots, N \quad (27)$$

3.2 第二階層での測位

3.2.1 第二階層における状態空間モデル

第一階層を通して、見通し外伝搬に起因した誤差成分は軽減され、 K 個の距離情報 $\Delta \hat{d}_k(t)$, $k = 1, \dots, K$ は随時適切な値に修正されることとなる。その結果、第二階層では、簡潔かつ静的な測位処理を行うことが許される。ここでの状態量推定では、タグの二次元座標が、推定されるべき“状態量”として定義される。粒子の一つひとつが状態量を有し、その状態量が収束するまでフィルタリング及びリサンプリングのプロセスを繰り返す。ここで、繰返し数をカウントするための新たなパラメータ n を導入し、状態空間モデルを以下のように修正する。

$$x_n = x_{n-1} \quad (28)$$

$$y_n = Hx_n + w_n \quad (29)$$

第二階層では、状態ベクトルは二次元座標そのもので

ある: $\mathbf{x}_n = \{x(n), y(n)\}$. 観測ベクトル \mathbf{y}_n は, 第一階層を通して補正された K 個の距離情報を要素にもつ: $\mathbf{y}_n = [\Delta \hat{d}_1, \dots, \Delta \hat{d}_K]^T$. 観測値に含まれていた異常値は, 第一階層を通して軽減されているため, 第二階層では観測ノイズとしてコーシー分布ではなくガウス分布 $\mathcal{N}(0, \mu^2)$ を与える. したがって, 観測ノイズベクトルに含まれる全要素 $\mathbf{w}_n = [w_1, \dots, w_K]^T$ は, $\mathcal{N}(0, \mu^2)$ に従うとする. 式 (29) において, 観測行列 \mathbf{H} は, 二次元座標 \mathbf{x}_n を距離情報に置き換える演算処理を表す. 行列 \mathbf{H} のサイズは $(K \times 1)$ であり, 新たな関数 $h_{ij}(X, Y)$ によって次式のように表される.

$$\mathbf{H} = \begin{bmatrix} h_{1,1}(X, Y) \\ \vdots \\ h_{i,j}(X, Y) \\ \vdots \\ h_{m-1,m}(X, Y) \end{bmatrix} \quad (30)$$

ここで $h_{ij}(X, Y)$ は, 次の演算を実行する関数である.

$$h_{i,j}(X, Y) \cdot \mathbf{x}_n = \sqrt{(x_i - x(n))^2 + (y_i - y(n))^2} - \sqrt{(x_j - x(n))^2 + (y_j - y(n))^2} \quad (31)$$

3.2.2 第二階層における粒子フィルタを用いた測位アルゴリズム

第二階層における, タグの位置推定プロセスは以下のとおりである.

- STEP1: 初期分布に従う粒子の生成

状態量ベクトルとして $\mathbf{x}_1^{(i)} = \{x^{(i)}(1), y^{(i)}(1)\}$, ($i = 1, \dots, N'$) を有する N' 個の粒子を生成する. ここで, $x^{(i)}(1)$ 及び $y^{(i)}(1)$ は一様分布 $\mathcal{U}(0, 100)$ に従うものとする. なお, 測位フィールドは以下の二次元平面を想定する: ($0 \leq x[m] \leq 100, 0 \leq y[m] \leq 100$)

- STEP2: 推定位置 $\hat{\mathbf{x}}_n$ が十分に収束するまで以降の処理を繰り返す: $n = 1, 2, \dots$

- STEP2-1: $\mathbf{x}_n^{(i)}$ のゆう度の算出

観測ベクトル \mathbf{y}_n 及び観測ノイズ分布を用いて, 粒子 $\mathbf{x}_n^{(i)}$ のゆう度 $\alpha_n^{(i)}$ を算出する.

$$\alpha_n^{(i)} = r(\|\mathbf{y}_n - \mathbf{H}\mathbf{x}_n^{(i)}\|; 0, \mu^2), \quad i = 1, \dots, N' \quad (32)$$

ここで $r(x; 0, \mu^2) = \mathcal{N}(0, \mu^2)$ であり, 記号 $\|\cdot\|$ はベクトルのノルムを表す. 算出されたゆう度は, 次式により正規化される, $\alpha_n^{(i)} = \alpha_n^{(i)} / (\sum_i \alpha_n^{(i)})$.

- STEP2-2: 推定座標の算出

タグ座標の推定値を次式のように算出する.

$$\hat{\mathbf{x}}_n = \sum_{j=1}^{N'} \alpha_n^{(j)} \mathbf{x}_n^{(j)} \quad (33)$$

- STEP2-3: 粒子群のリサンプリング

式 (34) で表される確率に基づいて, 粒子群 $\mathbf{x}_n^{(i)}$ をリサンプルし, 次の繰返しに用いる.

$$\Pr(\mathbf{x}_{n+1}^{(i)} = \mathbf{x}_n^{(i)}) = \alpha_n^{(i)}, \quad i = 1, \dots, N' \quad (34)$$

- STEP2-4: 粒子の分散

リサンプリングの後, 粒子の状態量ベクトルが初期分布で与えた座標のみに収束してしまうのを避けるため, 粒子の状態量ベクトルを次式に基づいて限定的に拡散させる.

$$\mathbf{x}_{n+1}^{(i)} = \mathbf{x}_n^{(i)} + \mathbf{w} \quad (35)$$

ここで $\mathbf{w} = \{w_x, w_y\}$ は $\mathcal{N}(0, \mu^2/n)$ に従うものとする.

4. (数値) シミュレーション結果

本章では, 提案システムを用いた場合の測位・トラッキング特性を計算機シミュレーションによって示し, 従来方式との比較を行う. 上述のとおり, タグの存在範囲は 100 [m] 四方の二次元平面に限定し, 基地局ノードの総数は $m = 4$ とした. ノードの座標は既知であり, $[x, y] = [25, 25], [25, 75], [75, 25], [75, 75]$ に設置する. すべてのノードがタグからの信号を消失なしに受信するものとし, タグの移動状況を随時推定する. 伝搬環境は, AWGN 成分 $\mathcal{N}(0, \sigma^2)$ と NLOS 成分 $\mathcal{E}(\lambda, \lambda^2)$ によって決まり, 二つのパラメータ σ^2 及び λ によって特徴づけられるものとする. 本論文では, 観測値に加わるガウスノイズは平均 0, 分散 $\sigma^2 = 5$ で一定とする. NLOS 伝搬に起因する影響を検討するため, パラメータ λ による特性変化に着目する. タグの移動軌跡としては, 屋内環境で廊下に沿って直進ないし 90 度のターンを繰り返しながら, 一定速度 ($V = 1$ [m/s]) で 160 [m] 移動する軌跡を与える. タグの軌跡は図 5, 図 6, 図 7 において実線で示されている. これらの三つの図では, 3 種類の測位アルゴリズムによって推定されたトラッキング結果がドットで示されている. なお, 伝搬環境はいずれの場合も $\sigma^2 = 5, \lambda = 2$ としている. それぞれの図における測位アルゴリズムは以下のように分類される.

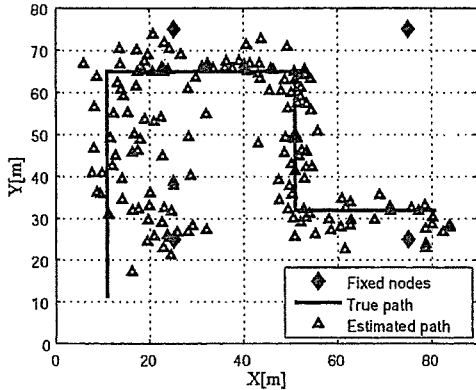


図 5 タグのトラッキング (Case 1): ニュートン法
Fig.5 Path Estimation (Case 1): Conventional Newton algorithm. ($\sigma^2 = 5, \lambda = 2$)

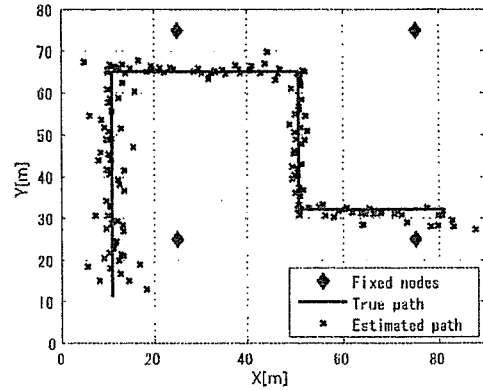


図 7 タグのトラッキング (Case 3): 提案する階層型粒子フィルタ
Fig.7 Path Estimation (Case 3): Proposed Layered Particle Filter algorithm. ($\sigma^2 = 5, \lambda = 2$)

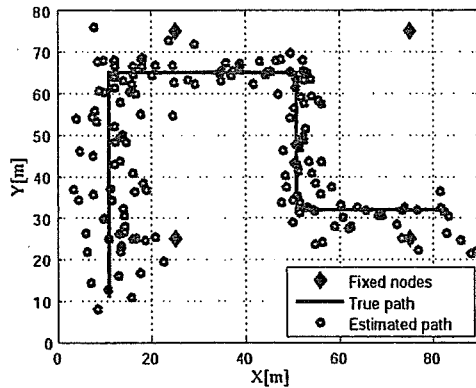


図 6 タグのトラッキング (Case 2): 観測値補正を行わない従来の粒子フィルタ
Fig.6 Path Estimation (Case 2): Particle Filter without measurements modification. ($\sigma^2 = 5, \lambda = 2$)

- Case1 (図 5)

従来のニュートン法による測位結果。初期推定値は $[x, y] = [50, 50]$ 。

- Case2 (図 6)

第二階層のみの粒子フィルタを用いた測位結果。従来の粒子フィルタによる測位方式に相当。粒子数は $N' = 50$, 観測ノイズのパラメータは $\mu^2 = 10$ 。

- Case3 (図 7)

提案する階層型粒子フィルタによる測位結果。粒子数は第一階層が $N = 1000$, 第二階層が $N' = 50$ 。状態空間モデルにおける初期状態パラメータは $\nu^2(0) = 3, \eta^2(0) = 0.5, \rho^2 = 0.2, \xi^2 = 0.2, \mu^2 = 10$ 。

図 5 より, 従来の線形探索アルゴリズムであるニュートン法では, 伝搬環境に起因した測定誤差によって大

きく測位精度が劣化してしまっていることが分かる。一般にニュートン法は, 初期推定値を適切に与えなければ推定値が正しく収束しない。図 5 では, 初期推定値としてノードに囲まれた中心点である $[x, y] = [50, 50]$ を与えているため, ノードに囲まれていないエリアでは特に測位精度が悪くなり, タグの追跡ができていない。図 6 は, 第一階層を省いて第二階層での状態推定のみを利用した測位結果であり, 図 5 と比べて測位精度に改善が見られる。エリア内に複数の粒子を一樣に分散させた上で, 繰返しゆう度計算を行っているため, ニュートン法のように初期推定値によって大きく精度が変動する心配がない。一般にセンサネットワークにおける測位特性は, 初期推定値の与え方に大きく依存する。これは, 伝搬環境や測位アルゴリズムの非線形性に起因するものである。第二階層での粒子フィルタを用いたマルチ探索手法は, このような非線形性による影響を軽減する効果がある。しかしながら, 第二階層のみの位置推定では, マルチパスや NLOS 伝搬に起因した測定誤差を全く考慮に入れていないことから, 依然として大きな測位誤差が見られる。図 7 は, 提案する階層型粒子フィルタを用いた場合の測位結果である。第一階層での観測値の補正によって, 最終的に得られる測位精度が大幅に改善していることが確認できる。また, 粒子数として第一階層では $N = 1000$, 第二階層では $N = 50$ と設定したが, これは経験的に定めたものであり, 実験環境や想定ノード数によって最適な粒子数は変化する。一般に粒子数を増やすほど特性が改善されるが, それに伴って演算量も増大し, 特

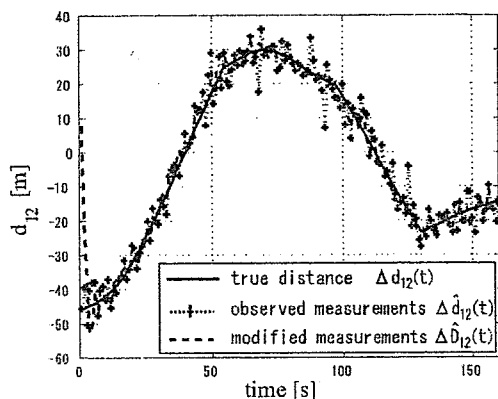


図 8 距離情報の時間変化 (タグからノード #1, ノード #2 までの距離の差の変化): 真の距離, 測定距離, 提案方式による誤差補正をした後の測定距離

Fig.8 Time change of distance information (The range difference between the tag and the nodes #1 and #2.): True distance, Measured distance and Modified distance.

に第二階層では粒子数の増大に伴う演算量への影響が大きい。本論文では、粒子数増大による特性改善効果が緩やかになる数値として前述の値を設定しており、最適な粒子数の理論的導出が今後の検討課題といえる。

第一階層での誤差補正の効果を示す評価として、ノード #1: $[x, y] = [25, 25]$ 及びノード #2: $[x, y] = [25, 75]$ からのタグまでの距離の差 $\Delta d_{12}(t)$ の実測値 $\Delta \hat{d}_{12}(t)$ が、トラッキングの過程でどのように変化しているかを図 8 に示した。伝搬環境は、 $\sigma^2 = 5$, $\lambda = 2$ の NLOS 環境である。図 5, 図 6, 図 7 で示した移動経路と同じ経路を考え、タグが 1[m] 進むごとにノード #1, #2 で距離測定を行った場合の $\Delta \hat{d}_{12}(t)$ の時間変化をサンプルした。ノード #1 と #2 は同じ x 座標であることから、タグが Y 座標に沿って移動する場合 ($time = 1 \sim 55 [s]$, $96 \sim 130 [s]$) では真の距離の差 Δd_{12} が大きく変動し、 X 座標に沿って移動する場合 ($time = 56 \sim 95 [s]$, $131 \sim 160 [s]$) では距離の差 Δd_{12} は緩やかに変動している。点線 (+印) で示した従来方式は、NLOS 補償を行わないために、大きな異常値を頻繁に生じている。一方、破線で示した提案方式では、第一階層での NLOS 補償の効果で、大きな異常値にひっぱられることなく、真の距離情報とほぼ同じ観測値が得られていることが分かる。しかし、トラッキングの初期 ($time = 1 \sim 5 [s]$) の段階では、状態空間モデルの初期推定値からのずれを修正して追従しているために誤差が大きくなってし

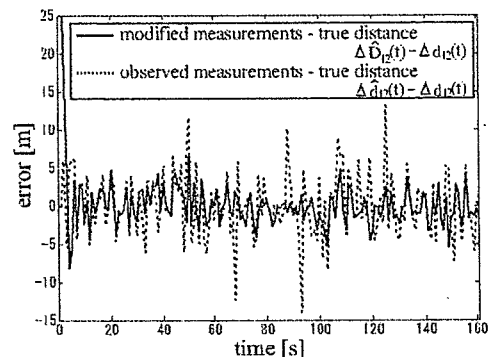


図 9 距離情報の誤差の時間変化 (タグからノード #1, ノード #2 までの距離の差を観測した際の誤差特性): 破線は測定値と真値との差, 実線は提案方式による修正値と真値との差を表す。

Fig.9 Time change of distance information error. (The error characteristics of range difference between the tag and the nodes #1 and #2.)

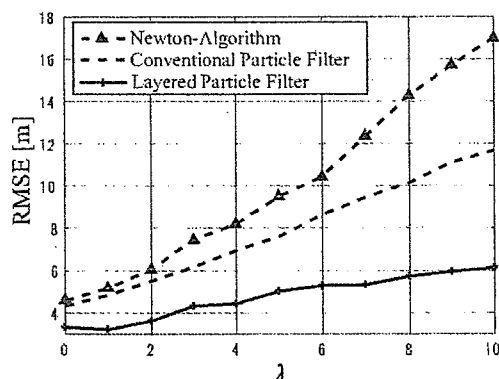


図 10 伝搬路特性を変化させたときの平均測位誤差特性
Fig.10 Positioning Error Characteristics via channel parameter. ($\sigma^2 = 5$, $\lambda \in (0, 10)$)

まっている。また、図 8 における真値との誤差特性を図 9 に示す。従来方式における観測値と真値との差 $\Delta \hat{d}_{12}(t) - \Delta d_{12}(t)$ は、全体的に誤差が大きく、頻繁に異常値が現れている。一方、提案方式によって修正した観測値と真値との差 $\Delta \hat{D}_{12}(t) - \Delta d_{12}(t)$ は、観測初期に大きな誤差が現れているものの、すぐに誤差が小さく抑えられている様子が分かる。

伝搬路を特徴づける二つのパラメータのうち、NLOS 伝搬による影響を表す λ を変化させた場合の二乗平均平方根誤差 (Root Mean Square Error: RMSE) 特性を図 10 に示す。ここでは、図 5, 図 6, 図 7 で示した経路に沿ってタグが移動したときの RMSE 特性を算出した。 λ が大きくなるほど、劣悪な伝搬路環境

となり、いずれの方式も測位精度が劣化している。しかし、提案する階層型粒子フィルタは、その劣化の度が非常に小さく済んでいる。これは、第一階層でのマルチパス補償によるものである。特に、状態量ベクトルに伝搬路パラメータの時間遷移を組み込んだことにより、実際の伝搬環境と推定初期値とのずれを逐次補正していく効果が現れている。したがって、提案方式は環境変化に対して非常にロバストなアルゴリズムであるといえる。

5. むすび

本論文では、TDOA 型センサネットワークにおける新しい位置推定法として、階層型粒子フィルタを利用したアルゴリズムを提案し、その特性解析を行った。提案方式は、マルチパスや見通し外伝搬といった実環境に即した伝搬環境において、ロバストで高精度な測位を実現できることを示した。

今後の課題としては、従来方式との演算量比較や、複数タグの位置検出法の検討等が挙げられる。

謝辞 本研究の一部は、総務省戦略的情報通信研究開発推進精度 (SCOPE) 「UWB インテリジェント測位センサーネットワークの研究開発と医療・ホーム・オフィスへの応用」からの委託研究で実施したものである。関係各位に深謝申し上げます。

文 献

- [1] I.F. Akyildiz, W. Su, Y. Sankarasubramaniam, and E. Cayirci, "A survey on sensor networks," *IEEE Commun. Mag.*, vol.40, no.8, pp.102-114, Aug. 2002.
- [2] N. Patwari, J.N. Ash, S. Kyperountas, A.O. Hero, R.L. Moses, and N.S. Correal, "Locating the Nodes," *IEEE Signal Process. Mag.*, vol.22, no.4, pp.12-23, July 2005.
- [3] N. Patwari, A.O. Hero, M. Perkins, N.S. Correal, and R.J. O'Dea, "Relative location estimation in wireless sensor networks," *IEEE Trans. Signal Process.*, vol.51, no.8, pp.2137-2148, Aug. 2003.
- [4] H. Kong, Y. Kwon, and T. Sung, "Comparisons of TDOA triangulation solutions for indoor positioning," *Proc. International Symposium on GNSS*, Dec. 2004.
- [5] F. Gustafsson and F. Gunnarsson, "Positioning using time-difference of arrival measurements," *Proc. ICASSP'03*, vol.6, pp.VI-553-6, April 2003.
- [6] 川端 学, 朝生雅人, 斎川貴彦, 服部 武, "セルラーシステムにおける最ゆう推定法に基づく TDOA システムの位置検出性能評価," *信学論 (B)*, vol.J87-B, no.2, pp.285-291, Feb. 2004.
- [7] 谷口健太郎, 河野隆二, "粒子フィルタを利用した TDOA 型室内位置推定に関する一検討," *信学技報*, RCS2005-

227, March 2006.

- [8] K. Taniguchi and R. Kohno, "Positioning and tracking algorithm using layered particle filter in wireless sensor networks," *Proc. GSN'06*, Boston, USA, Oct. 2006.
 - [9] A.H. Sayed, A. Tarighat, and N. Khajehnouri, "Network-based wireless location," *IEEE Signal Process. Mag.*, vol.22, no.4, pp.24-40, July 2005.
 - [10] W.H. Foy, "Position-location solutions by Taylor-series estimation," *IEEE Trans. Aerosp. Electron. Syst.*, vol.AES-12, no.2, pp.187-193, 1976.
 - [11] S.J. Godsill, A. Doucet, and M. West, "Monte Carlo smoothing for nonlinear time series," *J. Amer. Stat. Assoc.*, vol.99, no.465, pp.156-168, 2004.
 - [12] P. Nordlund, F. Gunnarsson, and F. Gustafsson, "Particle filters for positioning in wireless networks," *Proc. EUSIPCO'02*, pp.311-314, Toulouse, France, Sept. 2002.
 - [13] D.B. Jourdan, J.J. Deyst, M.Z. Win, and N. Roy, "Monte Carlo localization in dense multipath environments using UWB ranging," *Proc. ICU'05*, pp.314-319, May 2005.
 - [14] M.P. Wylie and J. Holtzman, "The non-line of sight problem in mobile location estimation," *IEEE Int. Conf. Univ. Pers. Commun.*, vol.2, pp.827-831, Sept. 1996.
 - [15] A. Doucet, N. de Freitas, and N. Gordon, *Sequential Monte Carlo Methods in Practice*, Springer-Verlag, New York, 2001.
 - [16] N. Ichimura and N. Ikoma, "Filtering and smoothing for motion trajectory of feature point using non-Gaussian state space model," *IEICE Trans. Inf. & Syst.*, vol.E84-D, no.6, pp.755-759, June 2001.
- (平成 18 年 3 月 27 日受付, 6 月 20 日最終原稿受付)

谷口健太郎 (学生員)



平 17 横浜国立大学大学院博士課程前期了。現在、同大大学院博士課程後期在学中。UWB, センサネットワーク, 情報理論に関する研究に従事。IEEE 学生員。



河野 隆二 (正員:フェロー)

昭 54 横浜国大・工・情報卒. 昭 59 東大大学院博士課程了. 工博. 同年東洋大・工・講師. 昭 61 同大学・工・電気助教授, 昭 63 横浜国大・工・電子情報助教授を経て, 平 10 より同教授. 昭 59~60 カナダ, トロント大客員研究員. 情報通信システム, 情報理論, 符号理論, デジタル信号処理, スペクトル拡散通信 (CDMA), 移動通信, 高度交通システム (ITS), アレーアンテナによる時空間信号処理, ソフトウェア無線 (SDR), UWB 無線の研究に従事. 平 10~14 ソニーコンピュータサイエンス研究所先端情報通信研究室室長兼業, 平 14 より (独) 情報通信研究機構 UWB 結集型特別グループリーダー併任, 文部科学省 21 世紀 COE プログラム「横浜国立大学: 情報通信技術に基づく未来社会基盤創生」拠点リーダー. 本会スペクトル拡散研究専門委員会委員長, 同 ITS 研究専門委員会委員長, 同ソフトウェア無線時限研究専門委員会委員長, IEEE Transactions on Communications 及び Transactions on Information Theory の Editor, IEEE Information Theory Society 理事などを歴任. 平 11 年度本会業績賞受賞「スペクトル拡散通信に関する先駆的研究」, 平 15 年度第 1 回ドコモモバイルサイエンス賞先端技術優秀賞受賞.



Available online at www.sciencedirect.com



Electrochimica Acta xxx (2007) xxx–xxx

ELECTROCHIMICA
Acta

www.elsevier.com/locate/electacta

An enzyme-based microfluidic biofuel cell using vitamin K₃-mediated glucose oxidation

Makoto Togo, Akimasa Takamura, Tatsuya Asai,
Hirokazu Kaji, Matsuhiko Nishizawa*

*Department of Bioengineering and Robotics, Graduate School of Engineering, Tohoku University,
Aoba 6-6-01, Aramaki, Aoba-ku, Sendai 980-8579, Japan*

Received 12 December 2006; received in revised form 15 January 2007; accepted 29 January 2007

Abstract

Vitamin K₃-modified poly-L-lysine (PLL-VK₃) was synthesized and used as the electron transfer mediator during catalytic oxidation of NADH by diaphorase (Dp) at the anode of biofuel cell. PLL-VK₃ and Dp were co-immobilized on an electrode and then coated with NAD⁺-dependent glucose dehydrogenase (GDH). The resulting enzymatic bilayer (abbreviated PLL-VK₃/Dp/GDH) catalyzed glucose oxidation. Addition of carbon black (Ketjenblack, KB) into the bilayer enlarged the effective surface area of the electrode and consequentially increased the catalytic activity. An oxidation current of ca. 2 mA cm⁻² was observed when the electrochemical cell contained a stirred 30 mM glucose, 1.0 mM NAD⁺, pH 7.0 phosphate-buffered electrolyte solution. The performance of glucose/O₂ biofuel cells, constructed as fluidic chips with controllable fuel flow and containing a KB/PLL-VK₃/Dp/GDH-coated anode and an Ag/AgCl or a polydimethylsiloxane-coated Pt cathode, were evaluated. The open circuit voltage of the cell with the PDMS-coated Pt cathode was 0.55 V and its maximum power density was 32 μW cm⁻² at 0.29 V when a pH 7.0-buffered fuel containing 5.0 mM glucose and 1.0 mM NAD⁺ was introduced into the cell at a flow rate of 1.0 mL min⁻¹. The cell's output increased as the flow rate increased. During 18 h of continuous operation of the cell with a load of 100 kΩ, the output current density declined by ca. 50%, probably due to swelling of the enzyme bilayer.

© 2007 Elsevier Ltd. All rights reserved.

Keywords: Biofuel cell; Vitamin K₃; Diaphorase; Glucose dehydrogenase; Microfluidics

1. Introduction

Enzymatic biofuel cells that generate electric power from the oxidation of carbohydrates such as glucose [1–10] or alcohol [11–13] have recently attracted attention because such cells can have a simple structural design (non-compartmentalized) and can operate under mild conditions. The basic characteristics of enzymatic biofuel cells are generally dictated by the enzyme and the electron transfer mediator used [14–16]. Although, based on recent reports, mediator-free electrocatalysis may soon be possible [17,18]. Mediator molecules, when situated at the anode, must have a negative redox potential. They must also be environmentally inert so that they can be easily disposed of (with the spent cell) and/or implanted as part of a medical device with-

out harming the patient. Therefore, 2-methyl-1,4-naphthoquinone (vitamin K₃, VK₃) is potentially a most promising mediators of diaphorase (Dp), which oxidizes nicotinamide-adenine dinucleotide (NADH) to NAD⁺ [19,20]. NAD⁺ is a cosubstrate for dehydrogenase, which comprise the largest group of redox enzymes known and includes NAD⁺-dependent glucose dehydrogenase (GDH). Sato et al. immobilized poly-L-lysine that had been modified with a VK₃ derivative and Dp on an electrode surface. This system exhibits diffusion-controlled NADH oxidation [19]. Recently, we constructed an electrode that could be used for glucose oxidation by coating it with a Dp/GDH enzyme bilayer. The inner Dp layer was co-immobilization with VK₃-modified polyallylamine (PAA) [10].

The physical design of an enzymatic biofuel cell is an important aspect of biofuel cell research. Since these fuel cells would power independent power-on-chips and micro-electro-mechanical-systems, they must be micro-miniature power sources [14]. Additionally, an implanted device [2–5,7,14], such

* Corresponding author. Tel.: +81 22 795 7003; fax: +81 22 795 7003.
E-mail address: nishizawa@biomems.mech.tohoku.ac.jp (M. Nishizawa).

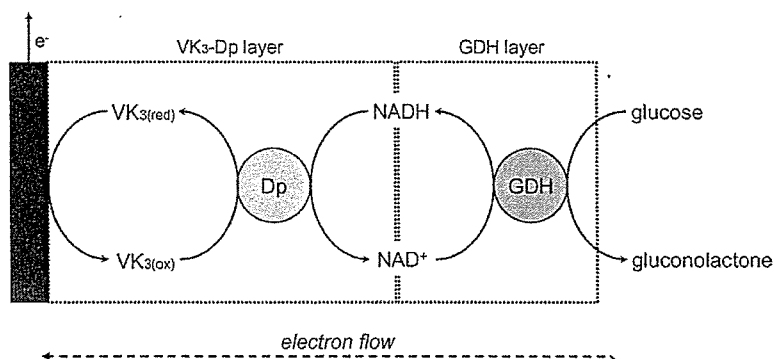


Fig. 1. The presumptive electron-relay/glucose oxidation system catalyzed by PLL-VK₃/Dp/GDH.

as one that regulates blood flow, would need a microfluidic-type biofuel cell as a power source. Therefore advanced microfabrication techniques, such as those used in the construction of primary batteries [21,22], fuel cells [23–25] will also probably be used to build the microfluidic components of enzymatic biofuel cells.

For the work reported herein, we first characterized the VK₃-modified poly-L-lysine (PLL-VK₃) as a mediator of Dp and then tested PLL-VK₃/Dp/GDH bilayer-coated anodes (with and without Ketjenblack (KB) present) for their abilities to oxidize glucose (presumably in the manner outlined in Fig. 1.) The electrochemical properties of a KB/PLL-VK₃/Dp/GDH-coated anode were evaluated using a conventional electrochemical cell and a microfabricated fluidic cell. The performance and stability of a biofuel cell containing a KB/PLL-VK₃/Dp/GDH-coated anode, a polydimethylsiloxane (PDMS)-coated Pt cathode, and air-saturated glucose fuel were studied at various fuel flow rates.

2. Experimental

2.1. Reagents

To synthesize VK₃-modified poly-L-lysine (PLL-VK₃) a procedure similar to one previously described [10] was used. 2-(3-Carboxypropyl)-3-methyl-1,4-naphthoquinone was activated by *N*-hydroxy-succinimide and then reacted with poly-L-lysine hydrochloride (M_w ca. 80,000, SIGMA) so as to modify ca. 40% of the backbone amide nitrogens. The *Bacillus stearothermophilus* diaphorase (EC 1.6.99; 1090 U/mg) was purchased from Unitika. NAD⁺-dependent glucose dehydrogenase (EC 1.1.1.47; 250 U/mg) was donated by TOYOBO. Ketjenblack (EC-600JD) was supplied by Ketjen Black International, Inc. PDMS (SYLPOT 184 W/C) was purchased from Dow Corning Toray. NADH and NAD⁺ were used as received from Oriental Yeast Co.

2.2. Electrodes and electrochemical measurements

Descriptions of the preparations of PLL-VK₃/Dp/GDH-coated electrodes follow. An 8 μ L PLL-VK₃ solution (4.83 mM VK₃) was mixed with a 2 μ L Dp solution (14 μ g μ L⁻¹ in 50 mM phosphate, pH 7.0). A 4 μ L portion of the resulting solution was

put onto a glassy carbon (GC) electrode (surface area, 0.07 cm²) and left to dry for 2 h. When KB was to be part of the system, first, 10 μ L of the PLL-VK₃/Dp solution (described above) was mixed with 1 μ L of KB that was dispersed in water (ca. 13 mg mL⁻¹). Then, a GC electrode was coated with a 4.4 μ L portion of this mixture. To create the enzymatic bilayer, the surface of a PLL-VK₃/Dp-coated electrode (with or without KB present) was coated with 4 μ L of a solution composed of equal volumes of a 16 μ g μ L⁻¹ GDH, 50 mM phosphate, pH 7.0 solution and a 16 mg mL⁻¹ PLL solution. Because the isoelectric points are 4.7 for Dp, 4.5 for GDH, and 9.74 for lysine, electrostatic interactions between the enzymes and PLL cause an insoluble catalytic bilayer to form at pH 7.0.

The Pt cathode's PDMS coating was constructed by placing a 2 mg mL⁻¹ aqueous PDMS emulsion (Toray Dow Corning Silicone, DC 85 ADDITIVE) onto a Pt plate electrode (66.7 μ L of the emulsion per cm²) and then drying the coated electrode for 3 h at room temperature [26].

All electrochemical measurements were performed in 50 mM phosphate, 0.1 M NaCl (pH 7.0) at 37 °C. The electrochemical properties of the two experimental electrodes (with and without KB present) were characterized using a three electrode system (Hokuto Denko HSV-100 electrochemical analyzer) containing an experimentally modified GC-disc electrode (3 mm in diameter) as the working electrode, an Ag|AgCl (saturated KCl) reference electrode, and a platinum wire counter electrode.

2.3. Microfluidic biofuel cell

To evaluate the performance of the KB/PLL-VK₃/Dp/GDH-coated electrode as an anode of a fuel cell, we constructed microfluidic fuel cells of the type shown in Fig. 2. Electrodes were patterned on the surfaces of glass slides by photolithography and sputtering, which is a lift-off process. The anode's electrode was an enzyme-modified gold disc (2 mm in diameter). The cathode's electrode was either PDMS-coated platinum (3 mm \times 10 mm) or a Ag|AgCl half-cell (2 mm in diameter). The Ag|AgCl cathode was fabricated by coating a Pt cathode with Ag|AgCl ink (BAS Inc.) that was then cured at 80 °C for 2 h. The fluidic channel was fabricated from PDMS film. The channel height was 1 mm and its width was 3 mm. The fuel cell performance was evaluated by measuring the cell volt-

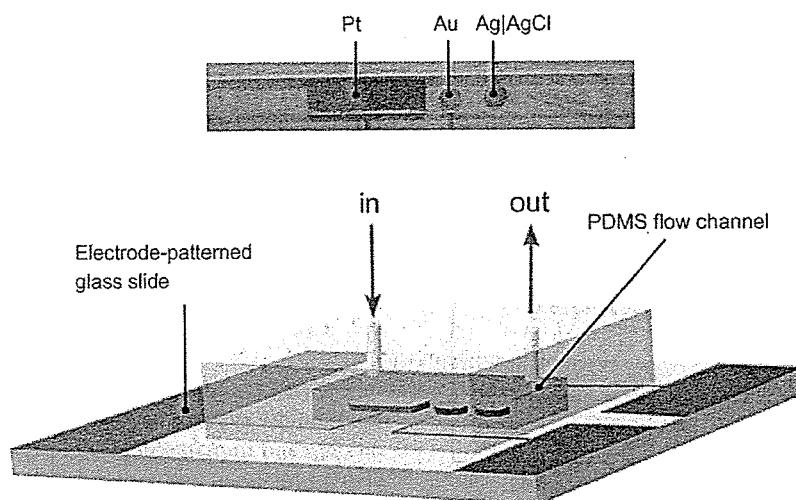


Fig. 2. The structure of the microfluidic biofuel cell used in this study.

age while varying the external resistance between 1 k Ω and 3 M Ω .

3. Results and discussion

3.1. Electrochemical properties of the PLL-VK₃/Dp/GDH-modified and the KB/PLL-VK₃/Dp/GDH-modified electrodes

The PLL-VK₃/Dp/GDH-modified electrode exhibited a reversible voltammetric waves that have the mid-peak potential of -0.27 V which is similar to that found for dissolved aqueous VK₃ (-0.19 V, pH 7.0). The separation between the oxidation and reduction peak potentials is 50 mV, while the separation increases slightly as the scan rate increases. The peak currents increased linearly as the scan rate increases, which is typical for a cell with an electrode that has redox molecules adsorbed on its surface.

As shown in Fig. 4, a catalytic oxidation current appeared on addition of 3.0 mM NADH (Fig. 3b, dashed curve) and was 50 times larger than we reported previously for the PAA-VK₃ system [10]. The longer side chains of PLL should increase the flexibility and the reach of the attached VK₃ molecules, which should, in turn, increase the frequency and productivity of collisions with the redox centers of Dp molecules. When both 3.0 mM glucose and 1.0 mM NAD⁺ were present, glucose-oxidizing catalytic currents resulted (Fig. 3c); the cell's voltammogram was similar to the one obtained when 3.0 mM NADH was present (Fig. 3b), suggesting that the presumptive electron-relay system diagramed in Fig. 1 functioned in the enzyme bilayer. It is worth noting that other NAD⁺-dependent dehydrogenases, such as alcohol dehydrogenase, could replace GDH.

We have shown that addition of KB to a PAA-VK₃-modified electrode greatly increases the electrochemical activity of that electrode [10]. Fig. 4 shows that the addition of KB to the PLL-VK₃/Dp/GDH-modified electrode produced approximately 10-fold larger current waves than that those found when KB was omitted (Compare the Y-axes of Figs. 3 and 4). Fig. 4

insert shows the current density dependence on glucose concentration at 0.4 V in the presence of 1.0 mM NAD⁺. The effective surface area of the KB-modified electrode was estimated using the non-faradic current at -0.5 V and was found to be ca. 46-fold larger than that of an unmodified GC electrode surface. The interactions between all components, i.e., the enzymes, the mediator, and the substrates, were not inhibited by the three-dimensional KB matrix. Although the shapes of the CVs suggest that an enzymatic reaction controlled the value of the catalytic current density, it could be further increased as high as 2 mA cm⁻² when the electrolyte solution was stirred (Fig. 4d). The mesoporous structure of the KB system would cause these complicating CV features.

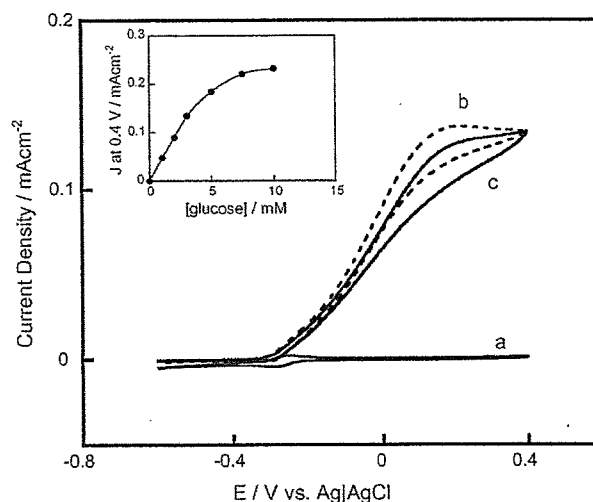


Fig. 3. (a) Cyclic voltammograms for an electrochemical cell containing a PLL-VK₃/Dp/GDH-modified GC electrode with a N₂-saturated pH 7.0 phosphate-buffered electrolyte solution at 37 °C. (b and c) Voltammograms for cells similar to that of Fig. 4(a) but with 3.0 mM NADH (b) or 3.0 mM glucose and 1.0 mM NAD⁺ (c) added to the electrolyte solutions. In all cases, the scan rate was 5 mV s⁻¹. The inset is a plot of the current density at 0.4 V vs. the glucose concentration.

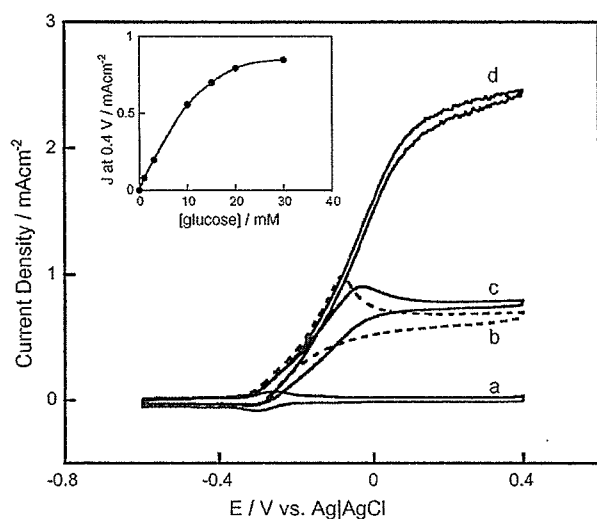


Fig. 4. (a) A cyclic voltammogram for a KB/PLL-VK₃/Dp/GDH-modified GC electrode in a N₂-saturated pH 7.0 phosphate-buffered electrolyte solution at 37 °C. (b–d) Cyclic voltammograms in the solution described in the legend of Fig. 4(a) but with 20 mM NADH (b), or 20 mM glucose, 1.0 mM NAD⁺ (c), or 30 mM glucose, 1.0 mM NAD⁺ (d). For (d), the electrolyte solution was stirred at 1000 rpm. In all cases the scan rate was 5 mV s⁻¹. The inset shows a plot of the current density at 0.4 V vs. glucose concentration.

We evaluated the effects of pH and temperature on the glucose oxidation performance of KB/PLL-VK₃/Dp/GDH-modified electrode (data not shown). The electrode functioned between pH 4.8 and 8.5 and showed maximal activity near pH 7. The electrode's performance improved with increasing temperature until reaching about 45 °C and then declined rapidly at higher temperatures. These results seem to directly reflect the enzymatic activity [27].

The stability of the modified-electrode when stored in a dry condition was evaluated daily by measuring the current density at 0 V (Fig. 5a). The electrode retained over 80% of its

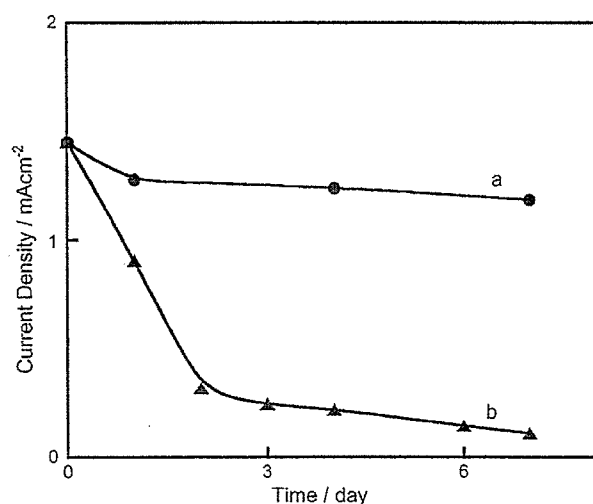


Fig. 5. Plots of the current density measured daily at 0 V in a N₂-saturated, 5.0 mM glucose, 1.0 mM NAD⁺ pH 7 phosphate-buffered electrolyte solution. The KB/PLL-VK₃/Dp/GDH-modified electrode that when not in use was (a) stored in air or (b) stored in the buffer solution (b).

initial activity at day 7. However, when stored in a phosphate buffer at room temperature (Fig. 5b), the initial current density of 1.5 mA cm⁻² decreased to 0.3 mA cm⁻² within 2 days and then decreased more gradually during the next 5 days. Possibly, the electrode activity decay was caused by both enzyme deactivation and spatial disruption of the electron relay system (Fig. 1) that could, in turn, be caused by a swelling of the bilayer. Also a gradual desorption of mediators and enzymes from the swelled bilayer would cause the decay of electrode performance.

3.2. Cell performance in a fluidic channel

Enzyme-based biofuel cells would be formatted into microfluidic systems as power sources for independent power-on-chip and implantable devices [2–5,7,14]. Such systems are also useful when evaluating the electrochemical stability of an experimental biofuel cell that is operating continuously, because the fuel flow rate, which can affect the cell's performance, can be regulated. We, therefore, constructed microfluidic-type cells (Fig. 2) containing an enzyme-modified Au anode and a PDMS-coated Pt or a Ag|AgCl cathode.

Fig. 6 depicts the current–voltage profiles (A) and the power–voltage profiles (B) of these cells when fueled with 5.0 mM glucose and 1.0 mM NAD⁺ at a flow rate of 1.0 mL min⁻¹. Whether the fuel was N₂-saturated (□) or air-saturated (Δ), a cell with a Ag|AgCl cathode, had a maximum current density of 0.13 mA cm⁻² and a maximum power density of 20 μW cm⁻² at 0.2 V. However, the open circuit voltage (OCV) was somewhat greater for the cell with N₂-saturated fuel (0.37 V) than for the cell with air-saturated fuel (0.31 V). The dissolved oxygen will oxidize VK₃ and the enzymes [28], which, in turn, decreases the OCV value. Even so, dissolved oxygen seems not to have a decisive and detrimental effect on the redox reactions of Fig. 1. The glucose/O₂ biofuel cell's performance was evaluated when equipped with a KB/PLL-VK₃/Dp/GDH anode and a PDMS-coated Pt cathode (Fig. 6, ○). PDMS emulsion-coated electrodes selectively reduce oxygen [26]. To evaluate only the anode's performance, the area of the Pt cathode was ca. 10 times larger than that of the anode. The Pt cathode was placed upstream of the anode, to minimize the presence of contaminating O₂ in the anode's vicinity. For this system, the OCV is 0.55 V and the maximum power density was 32 μW cm⁻² at 0.29 V. The maximum current density was again around 0.13 mA cm⁻², indicating that the cell's performance was limited by reactions at the anode.

The cell's performance was affected by the flow rate of the fuel (Fig. 7). At a 100 kΩ load, the discharge current density increased as the flow rate increased, which correlates with an increased delivery of fuel at the anode's surface. However, the direct relationship between the discharge current density and the flow rate could also be caused, in part or in whole, by a build-up of O₂ depletion layer in the anode's vicinity, which could occur effectively at lower flow rates. This possibility is supported by a numerical simulation that shows a growing O₂ depletion layer during pre-electrolysis of O₂ at a Pt cathode (data not shown). We are preparing a 3D microstructured cathode within the fluidic channel for effective pre-electrolysis elimination of O₂.

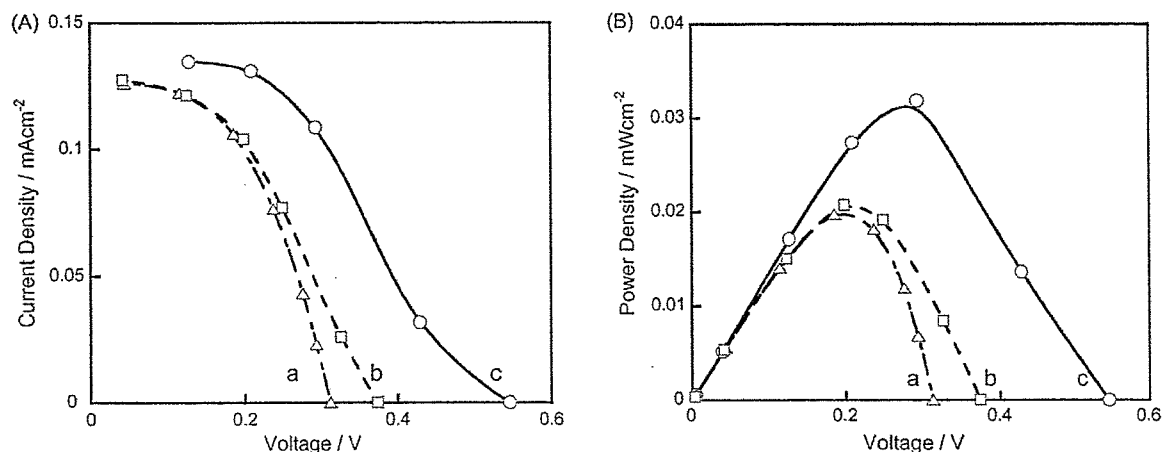


Fig. 6. (A) Current–voltage profiles and (B) power–voltage profiles for a fuel cell operating with a fuel flow rate of 1 mL min^{-1} at 37°C . The fuel was a pH 7 phosphate buffer containing 5.0 mM glucose and 1.0 mM NAD^+ . The anode was a KB/PLL-VK₃/Dp/GDH-coated Au electrode and the cathode was (a) a Ag|AgCl electrode (N_2 -saturated fuel), (b) a Ag|AgCl electrode (air-saturated fuel) or (c) a PDMS-coated Pt (air-saturated fuel).

We tested the stabilities of the biofuel cells (each with one of the two cathodes) by continuously operating them with a flow rate of 1.0 mL min^{-1} and a $100 \text{ k}\Omega$ load (Fig. 8). The values found for the discharge current densities at any given time for the two cells were essentially the same, indicating that reactions at the anodes controlled the cells' stabilities. During the first few hours of operation, the current increased, probably because the fuel penetrated into entire the bilayer. After peaking, the discharge current slowly decreased. After 18 h of continuous operation, for both cells, the discharge current density was ca. 0.05 mA cm^{-2} , which was still larger than half of the initial value. As mentioned previously to explain the results of Fig. 5, both gradual desorption of the enzymes and VK₃ and a partial functional degradation of the electron-relay system owing to bilayer swelling could cause the decrease in the discharge current densities. The cells' stabilities may be improved by optimizing the cross-linking of the PLL polymer and inhibiting swelling

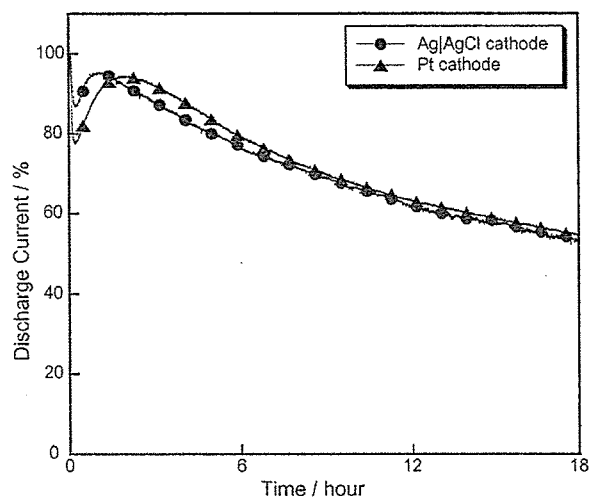


Fig. 8. Plots of the discharge current density ($R = 100 \text{ k}\Omega$) vs. time of operation for biofuel cells containing a KB/PLL-VK₃/Dp/GDH anode and a Ag|AgCl cathode (●) or a PDMS-coated Pt cathode (▲), and an air-saturated pH 7.0 phosphate-buffered fuel containing 1.0 mM NAD^+ and 5.0 mM glucose. Both cells were run at 37°C , with a flow rate of 1.0 mL min^{-1} .

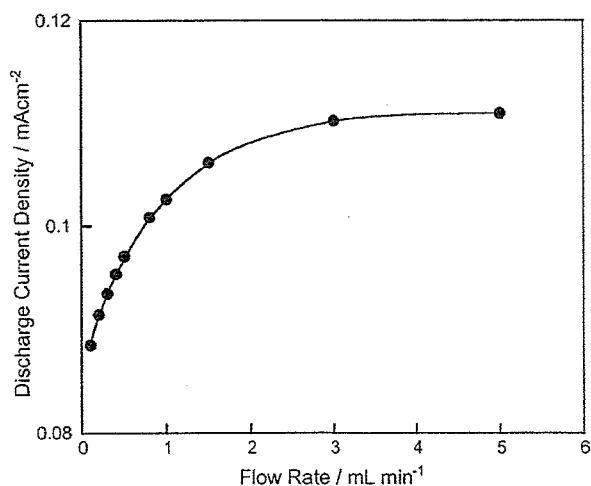


Fig. 7. A plot of the discharge current density vs. the fuel flow rate at 37°C for a biofuel cell containing a KB/PLL-VK₃/Dp/GDH-modified anode and a PDMS-coated Pt cathode. The load was $100 \text{ k}\Omega$. The fuel was an air-saturated pH 7.0 phosphate-buffered 1.0 mM NAD^+ , 5.0 mM glucose solution.

of the bilayer by physical means; e.g., lamination of the outer bilayer surface with an electrolyte-permeable film.

4. Conclusions

PLL-VK₃ was a mediator of Dp/GDH-catalyzed glucose oxidation. Other enzyme bilayers could be developed that would accommodate a different NAD^+ -dependent enzymes, and, thus, when any one such bilayer is a part of an anode in a biofuel cell, the cell could use a different fuel. We used fluidic cells with controlled fuel flow rates to evaluate the properties (e.g., stability) of a KB/PLL-VK₃/Dp/GDH electrode. The observed decay of electrode activity during the continuous operation of the cells is probably partially caused by swelling of the bilayer. Lamination with an electrolyte-permeable film might prevent excessive swelling. Oxidative degradation of the enzymes and

the mediator would be a serious problem during longer periods of operation. Therefore, to eliminate O₂ from vicinity of the anode, we set the cathode upstream of the anode. Construction of a 3D microstructured cathode is in progress and it should more effectively eliminate O₂ from the vicinity of the anode.

Acknowledgements

The authors express their appreciation to Dr. Kosuge and Dr. Fukasaku (Daiichi Pure Chemicals Co., Ltd.) for the synthesis of the VK₃ derivative, and to Prof. Kano and Prof. Tsujimura (Kyoto Univ.) for their kind advises concerning our research. This work was supported by a Health and Labor Sciences Research Grant from the Ministry of Health, Labor, and Welfare of Japan. Glucose dehydrogenase was donated by TOYOBO.

References

- [1] B. Willner, I. Willner, in: I. Willner, E. Katz (Eds.), *Bioelectronics*, Wiley–VCH, Weinheim, 2005, Chapter 3.
- [2] N. Mano, F. Mao, A. Heller, *J. Am. Chem. Soc.* 125 (2003) 6588.
- [3] A. Heller, *Phys. Chem. Chem. Phys.* 6 (2004) 209.
- [4] A. Heller, *AIChE J.* 51 (2005) 1054.
- [5] A. Heller, *Anal. Bioanal. Chem.* 385 (2006) 469.
- [6] E. Katz, B. Filanovsky, I. Willner, *New J. Chem.* (1999) 481.
- [7] E. Katz, A.F. Buckmann, I. Willner, *J. Am. Chem. Soc.* 123 (2001) 10752.
- [8] T. Tamaki, T. Yamaguchi, *Int. Eng. Chem. Res.* 45 (2006) 3050.
- [9] S. Tsujimura, K. Kano, T. Ikeda, *Electrochemistry* 70 (2002) 940.
- [10] F. Sato, M. Togo, M.K. Islam, T. Matsue, J. Kosuge, N. Fukasaku, S. Kurosawa, M. Nishizawa, *Electrochem. Commun.* 7 (2005) 643.
- [11] N.L. Akers, C.M. Moore, S.D. Minter, *Electrochim. Acta* 50 (2005) 2521.
- [12] C.M. Moore, S.D. Minter, R.S. Martin, *Lab. Chip* 5 (2005) 218.
- [13] G.T.R. Palmore, H. Bertschy, S.H. Bergens, G.M. Whitesides, *J. Electroanal. Chem.* 443 (1998) 155.
- [14] S.C. Barton, J. Gallaway, P. Atanassov, *Chem. Rev.* 104 (2004) 4867.
- [15] K. Kano, T. Ikeda, *Anal. Sci.* 16 (2000) 1013.
- [16] K. Kano, T. Ikeda, *Electrochemistry* 71 (2003) 86.
- [17] S. Tsujimura, K. Kano, T. Ikeda, *J. Electroanal. Chem.* 576 (2005) 113.
- [18] S. Tsujimura, T. Nakagawa, K. Kano, T. Ikeda, *Electrochemistry* 72 (2004) 437.
- [19] A. Sato, K. Kano, T. Ikeda, *Chem. Lett.* 32 (2003) 880.
- [20] Y. Ogino, K. Takagi, K. Kano, T. Ikeda, *J. Electroanal. Chem.* 396 (1995) 517.
- [21] F. Sammoura, K.B. Lee, L. Lin, *Sens. Actuators A* 111 (2004) 79.
- [22] K.B. Lee, J. Micromech. Microeng. 15 (2005) S210.
- [23] R. Ferrigno, A.D. Strook, T.D. Clark, M. Mayer, G.M. Whitesides, *J. Am. Chem. Soc.* 124 (2002) 12930.
- [24] E.R. Choban, L.J. Markoski, A. Wieckowski, P.J.A. Kenis, *J. Power Sources* 128 (2004) 54.
- [25] R.S. Jayashree, L. Gancs, E.R. Choban, A. Primak, D. Natarajan, L.J. Markoski, P.J.A. Kenis, *J. Am. Chem. Soc.* 127 (2005) 16758.
- [26] F. Mizutani, Y. Sato, Y. Hirata, S. Iijima, *Anal. Chim. Acta* 441 (2001) 175.
- [27] <http://www.toyoobo.co.jp/e/seihin/xr/enzyme/product.html>.
- [28] H. Tatsumi, H. Nakase, K. Kano, T. Ikeda, *J. Electroanal. Chem.* 443 (1998) 236.