

Migration durant les insolations visibles

Un réseau identique à celui réalisé précédemment (insolation à 244 nm durant 5 mn avec une intensité de $100\text{mW}\cdot\text{cm}^{-2}$) a cette fois-ci été effacé à l'aide d'une insolation homogène à 488 nm durant 15 mn avec une intensité de $75\text{ W}\cdot\text{cm}^{-2}$. Après cette insolation, la zone est blanchie et le réseau ne diffracte plus. Les images MET réalisées sur des copeaux de cette zone ne montrent plus de distributions organisées de nanoparticules mais uniquement quelques particules aléatoirement réparties dans le film (Figure 2.23(a)). Les mesures EDX réalisées avec une sonde de 20 nm sur ces copeaux donnent un rapport Ag/Ti de $31,2\% \pm 1,2\%$ indépendant de la position spatiale (Figure 2.23(a), (b)). Ceci implique qu'après effacement l'argent rediffuse dans le film de manière à obtenir une concentration homogène. L'augmentation du rapport Ag/Ti par rapport aux mesures de la section précédente n'est pas à prendre en compte car la concentration d'argent dans les films n'est pas obligatoirement homogène d'un copeau à l'autre, du fait des variations d'épaisseur inhérentes au mode de préparation de ces derniers.

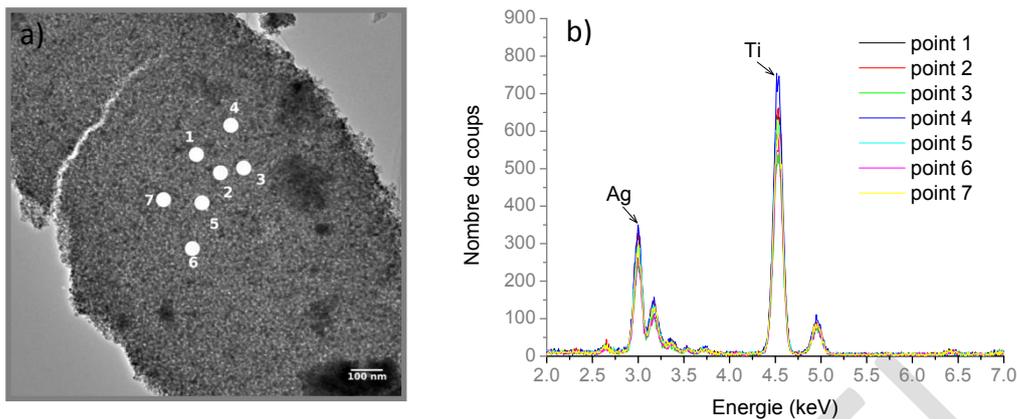


Figure 2.23 : Image MET (a) et spectres EDX (b) d'un réseau de nanoparticules d'argent formé par réduction UV et effacé à 488 nm

1.5.3 Migration durant les cycles d'écriture/effacement

Un réseau d'une période d'environ 144 nm a été inscrit à l'aide d'un miroir de Lloyd par insolation du film à 244 nm durant 5 mn avec une intensité de 100 mW.cm^{-2} . Ce réseau a été ensuite effacé par insolation à 488 nm durant 15 mn avec une intensité de 75 W.cm^{-2} (conditions identiques à la section précédente). Sur cette zone effacée, un nouveau réseau d'une période d'environ 244 nm, tourné de 90° par rapport au premier réseau a été inscrit à l'aide d'un miroir de Lloyd par insolation du film à 244 nm durant 5 mn avec une intensité de 8 mW.cm^{-2} . Les images réalisées sur des copeaux de la zone insolée montrent uniquement la présence du réseau de 244 nm de période (Figure 2.24(a), (b)). Les mesures EDX réalisées sur les lignes plus claires et les lignes plus sombres (Figure 2.24, (c)) donnent respectivement un rapport Ag/Ti de $20,5 \% \pm 2,3 \%$ dans les zones non insolées et de $31,4 \% \pm 0,4 \%$ dans les zones insolées. Ces variations de concentration relative sont similaires à celles mesurées à l'issue de la première photo-inscription UV. L'argent migre donc sur des distances largement supérieures à la taille des pores lors des insolations.

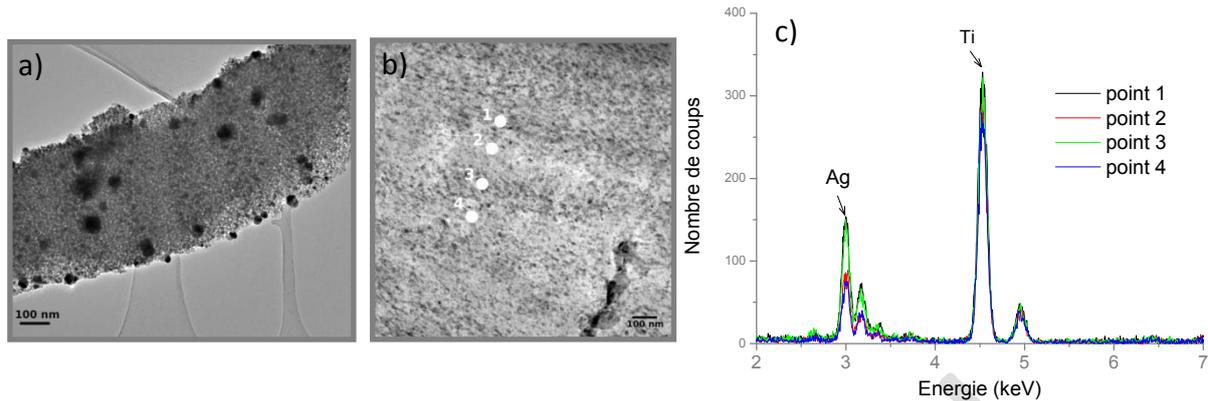


Figure 2.24 : Images MET (a,b) et spectres EDX (c) d'une zone sur laquelle un réseau de nanoparticules d'argent formé par réduction UV (~ 144 nm) a été effacé à 488 nm et où un second réseau de plus grande période (~ 244 nm) a été inscrit à 90° du premier par réduction UV

1.6 Stabilité des motifs dans le temps

Après avoir montré que ces films pouvaient être utilisés comme supports de données reconfigurables, il reste maintenant à étudier la stabilité des inscriptions au cours du temps en l'absence d'exposition laser. Le motif, déjà illustré à la Figure 2.11, réalisé à 244 nm et comportant une zone effacée localement point par point par insolation à 488 nm pendant 1s/point à 733 W.cm^{-2} (Figure 2.25(a), (c)) a été conservé au réfrigérateur et à l'abri de la lumière en l'enveloppant de papier aluminium. Deux ans plus tard (Figure 2.25(b), (d)), l'image optique en transmission sans agrandissement montre clairement le motif de 2 cm mais le contraste est devenu plus faible. La baisse du contraste est liée à un assombrissement dans les zones non insolées UV, ce qui peut être attribué à la formation spontanée de nanoparticules d'argent. Dans le tronc du palmier, le mot « ERASURE » reste néanmoins clairement identifiable sous un objectif de microscope avec pratiquement aucun changement de contraste.

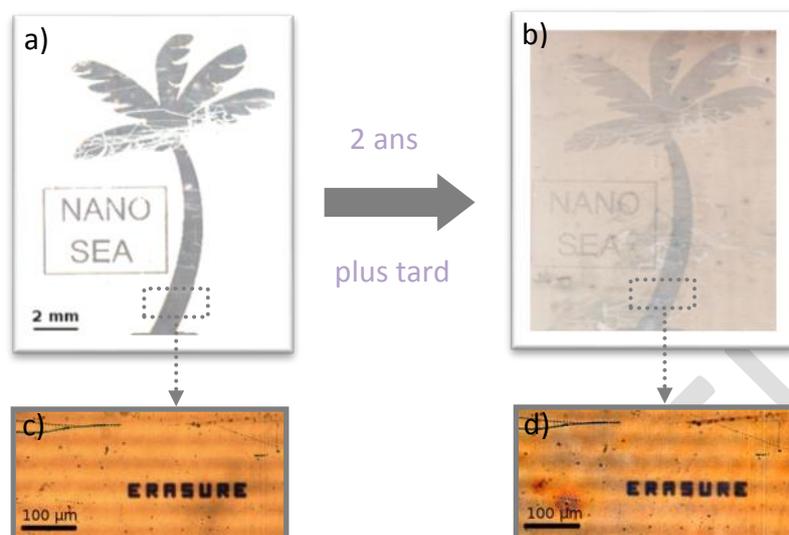


Figure 2.25 : Images optiques en transmission (en haut) et images optiques en réflexion avec grandissement (en bas) d'un motif inscrit à 244 nm et localement effacé (respectivement a et c). Images du même motif 2 ans plus tard (respectivement b et d)

Les inscriptions sont donc stables au moins deux ans, contrairement aux résultats rapportés dans la littérature où la durée de vie des inscriptions n'excède pas quelques jours [5], [86], même lorsque des composés thiolés [7] sont ajoutés pour limiter le blanchiment des inscriptions. Selon les références [7], [43], l'effacement des inscriptions se produit même dans l'obscurité car les nanoparticules d'argent s'oxydent en présence de l'oxygène absorbé dans le matériau. Dans les films mésoporeux utilisés, la stabilité est susceptible d'être liée à la porosité contrôlée du film, qui limiterait l'interaction des nanoparticules d'argent avec l'oxygène ambiant.

2 Méthodes numériques pour la photo-inscription d'images complexes monochromes

Différentes méthodes numériques peuvent être utilisées pour photo-inscrire des images complexes monochromes. Dans cette étude nous en présenterons deux, mais il en existe une multitude. Ces méthodes ne sont pas forcément les plus optimales mais leur utilisation permet d'obtenir des résultats satisfaisants. L'objectif de cette étude n'est pas de trouver la meilleure méthode mais de démontrer que la photo-inscription d'images

monochromes complexes est possible sur ce type d'échantillon. Les traitements d'images ont été réalisés à l'aide du logiciel du laboratoire Hubert Curien (Wima).

2.1 Ecriture point par point

La photo-inscription d'un motif monochrome peut se faire par une écriture point par point. Ce procédé nécessite simplement un déplacement de l'échantillon, sous un faisceau incident pouvant l'insoler ou non. On dispose pour cela de trois platines de translation motorisées le long de trois axes orthogonaux. Le déplacement de ces platines est commandé par ordinateur et synchronisé avec un obturateur contrôlant l'insolation de l'échantillon par le laser. N'importe quel type d'image peut être transféré sur nos échantillons à condition qu'elle puisse être rendue binaire à l'aide de différents traitements numériques. Dans cette étude, une méthode divisée en 4 grandes parties a été utilisée :

- **Conversion de l'image en niveaux de gris**

Cette première étape, parfois non nécessaire (image déjà en niveau de gris), a pour but de réduire les composantes de l'image en une seule, codée en niveau de gris. Elle permet de simplifier les traitements postérieurs en limitant l'image à 255 niveaux de gris, tout en n'ayant aucun impact sur le motif final (motif uniquement monochrome). Cette conversion a été réalisée en prenant la composante de luminance de l'espace Lab après passage de l'image RGB dans celui-ci. La Figure 2.26 donne un exemple de cette conversion.

- **Seuillage**

Le seuillage segmente l'histogramme de l'image en deux classes de façon à obtenir une image binaire (0 : noir et 255 : blanc). Il peut être réalisé de manière manuelle ou à l'aide de méthodes automatiques telles que la maximisation de la variance interclasse, de l'entropie Son choix dépend de l'image utilisée, dans le cas d'images avec de petits objets sur un fond homogène ou d'image avec des niveaux de gris hétérogènes, le seuillage par maximisation d'entropie est le plus adapté alors que dans le cas d'images avec une répartition plutôt homogène en niveau de gris, le seuillage par maximisation de la variance interclasse donne de meilleurs résultats. Pour l'image de la Figure 2.26, un seuillage automatique par maximisation de la variance interclasse a été utilisé (Figure 2.26)

- **Suppression des imperfections**

Cette étape permet de corriger, s'il y a lieu, les légères imperfections obtenues lors du seuillage (fusion d'objets, point mal affecté, petits défauts ...) en utilisant les outils de la morphologie mathématique (dilatation, érosion, fermeture, ouverture ...). Bien évidemment, ces corrections dépendent du seuillage et de l'image. Dans le cas de la Figure 2.26, le traitement morphologique n'est pas forcément nécessaire. Néanmoins, il est possible de réaliser un amincissement si l'on désire obtenir une image avec des détails plus fins (Figure 2.26).

- **Retranscription des données pour la photo-inscription du motif**

Après ces traitements numériques, il est nécessaire de convertir les données pour que celles-ci puissent être photo-inscrites à l'aide d'un logiciel qui commande le déplacement des platines et l'ouverture/fermeture du faisceau laser. Pour l'inscription point à point, une méthode consiste à utiliser la pixellisation des images numériques pour les coordonnées platine qui peuvent être insolées ou non. Il suffit alors de transmettre la matrice de l'image et son état d'illumination pour pouvoir la photo-inscrire. La taille d'un pixel correspondra alors au diamètre de la plus petite zone pouvant être insolée. Le logiciel commandant l'ouverture et la fermeture de l'obturateur considère qu'il y a ouverture pour la valeur 255 et fermeture pour la valeur 0. Pour le motif de la Figure 2.26, il est donc nécessaire d'inverser les zones pour que celui-ci soit retranscrit correctement.

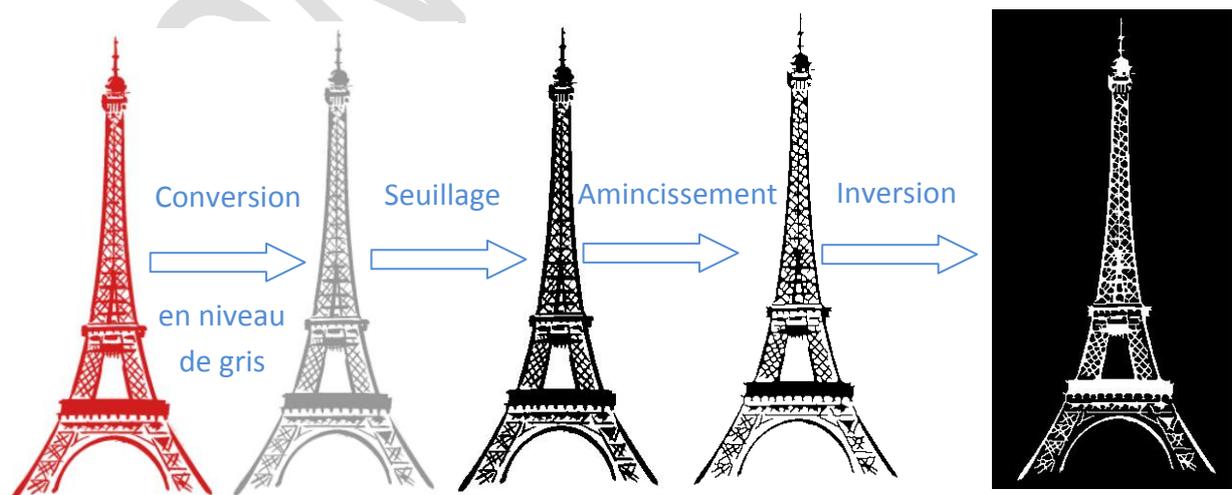


Figure 2.26 : Illustration des différents traitements d'image sur un motif

Le motif de la Figure 2.26 a été retranscrit en insolant un film mésoporeux d'oxyde de titane imprégné argent à 244 nm avec un faisceau focalisé dont l'intensité était de 32 kW.cm^{-2} et le temps d'exposition de 20 ms/point. Le pas a été fixé à $7 \mu\text{m}$, ce qui correspond au diamètre d'une zone insolée sur l'échantillon. Après photo-inscription (Figure 2.27), le motif est correctement reproduit, ce qui permet de valider la photo-inscription d'images monochromes complexes sur ce type d'échantillon. Cependant, du fait du temps de réponse de l'obturateur (qui ne peut descendre sous 10 ms) le temps nécessaire à la photo-inscription des motifs devient vite important si le nombre de pixels dans l'image est élevé (2 heures ont été nécessaires pour réaliser la tour Eiffel). Afin de réduire ce délai, une autre méthode plus efficace peut alors être utilisée.

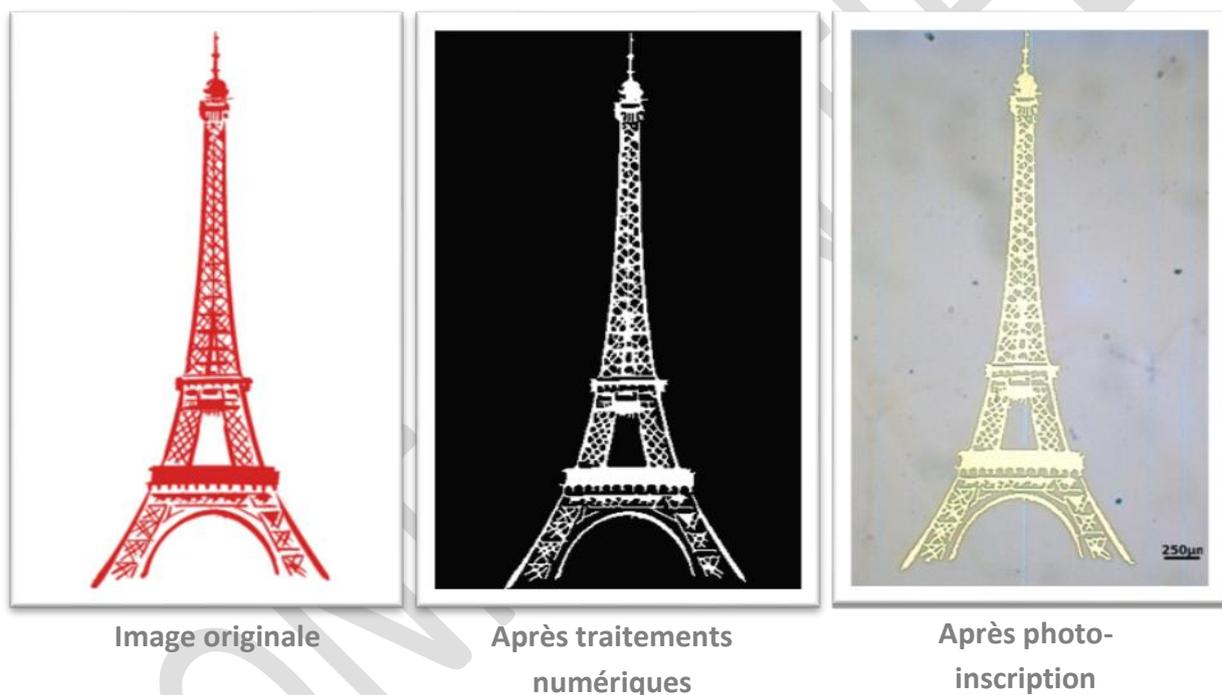


Figure 2.27 : Images d'un motif original avant traitements numériques, après traitements numériques et après sa photo-inscription point par point sur un film mésoporeux de TiO_2 imprégné d'argent

2.2 Ecriture en continu

Les films de TiO_2 mésoporeux imprégnés d'argent changent très facilement de couleur sous une insolation UV. De façon à optimiser le temps d'inscription, l'influence de la vitesse d'écriture et de l'intensité laser sur les motifs générés a été étudiée. Des lignes ont été écrites en continu à deux intensités différentes par translation d'un film sous un faisceau laser focalisé. L'image optique de la zone insolée (Figure 2.28) indique que la largeur des lignes diminue avec la vitesse de translation et augmente avec l'intensité incidente. Aux fortes vitesses, les extrémités des lignes sont plus larges à cause de l'accélération et la décélération des platines de translation. Le gros point à la fin de chaque ligne est quant à lui dû au délai entre la fin du trait et la fermeture du laser. Une vitesse de $12 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$ peut être utilisée pour inscrire un trait. En considérant une largeur à mi-hauteur du faisceau laser sur la surface de l'échantillon de $32 \mu\text{m}$ et en supposant que l'essentiel de l'énergie est délivrée sur cette demi-largeur, on peut estimer que le temps d'exposition moyen d'un point quelconque de la ligne est de 3 ms, ce qui est nettement plus court que ce que l'on peut obtenir lors d'une insolation statique avec notre obturateur.



Figure 2.28 : Lignes écrites à 244 nm en utilisant différentes vitesses de translation et deux intensités

Afin d'optimiser la photo-inscription de motifs monochromes complexes, des lignes peuvent donc être inscrites à la place des points. Une méthode numérique pratiquement identique à la précédente peut alors être utilisée. La seule différence réside dans la retranscription des données pour leurs photo-inscriptions.

Dans le cas de l'écriture en continu, l'objectif est de minimiser le nombre de déplacements de l'échantillon sous le faisceau incident. Il est donc nécessaire de déterminer la longueur maximale de chaque déplacement et de savoir si ceux-ci sont réalisés sous un

obturateur de faisceau ouvert ou fermé. L'image binaire est alors parcourue ligne par ligne pour compter le nombre de pixels successifs ayant la même valeur (255 ou 0). A chaque changement de valeur ou de ligne, le nombre de pixels est enregistré dans une nouvelle matrice. La connaissance de la valeur du premier pixel de chaque ligne et de la matrice contenant le nombre de pixels successifs permet par alternances successives de connaître l'état (insolé ou non) et la longueur (en pixel) de chaque ligne composant le motif. La Figure 2.29 illustre ce traitement numérique. Pour photo-inscrire un motif, il ne reste plus qu'à multiplier la matrice contenant le nombre de pixels par le diamètre de la zone insolée.

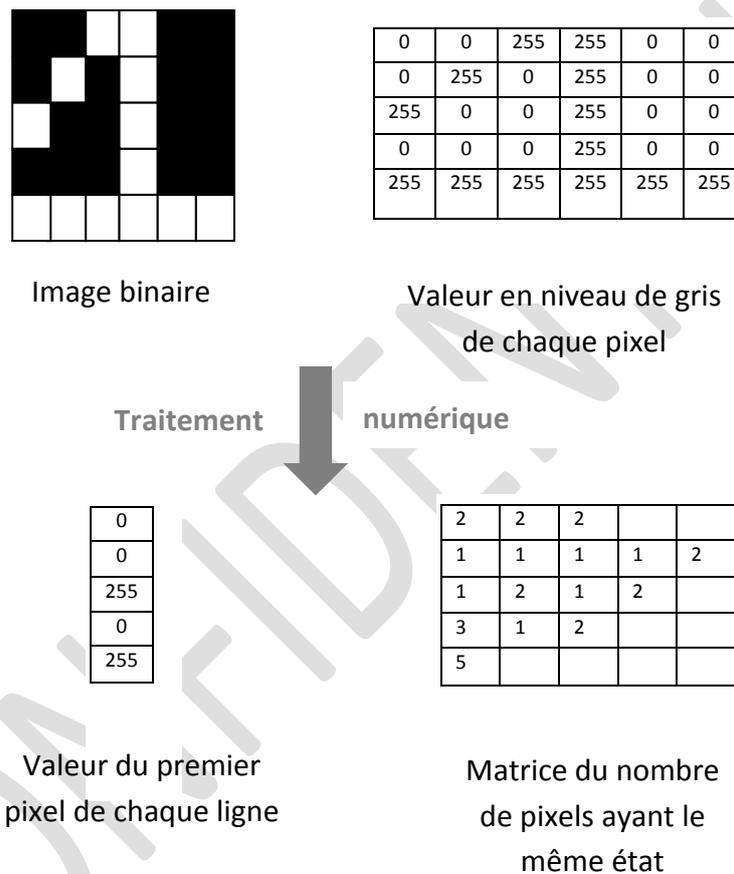


Figure 2.29 : Illustration du traitement numérique permettant la retranscription d'une image binaire en coordonnées platine et en zones insolées dans le cas de l'écriture en continu

Le motif du palmier précédemment illustré (Figure 2.11 et 2.25) a été photo-inscrit par écriture en continu par insolation d'un film à 244 nm sous un faisceau focalisé avec un diamètre de spot de 22 μm . L'intensité utilisée était de 5.2 kW/cm^2 et la vitesse de translation de l'échantillon sous le faisceau incident de 1 $\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$. Ce motif mesure 2 cm de haut et sa réalisation a pris une dizaine de minutes (Figure 2.30(a)). La Figure 2.30(b) illustre un autre motif photo-inscrit à 244 nm avec un spot de 17 μm ($I=2 \text{ kW}\cdot\text{cm}^{-2}$ et $v= 3 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$). De

même que le précédent, la réalisation du motif ne nécessite qu'une dizaine de minutes pour obtenir une inscription de $2 \times 3 \text{ cm}^2$ avec une résolution de $17 \text{ }\mu\text{m}$. Néanmoins, ces temps d'inscription ne sont pas optimisés, il est encore possible d'atteindre des durées d'inscription plus restreintes en augmentant notamment la vitesse de translation de l'échantillon sous le faisceau incident. La durée d'inscription des motifs photo-inscrits sur les films mésoporeux d'oxyde de titane imprégnés d'argent peut donc être considérablement abaissée en utilisant une écriture en continu.

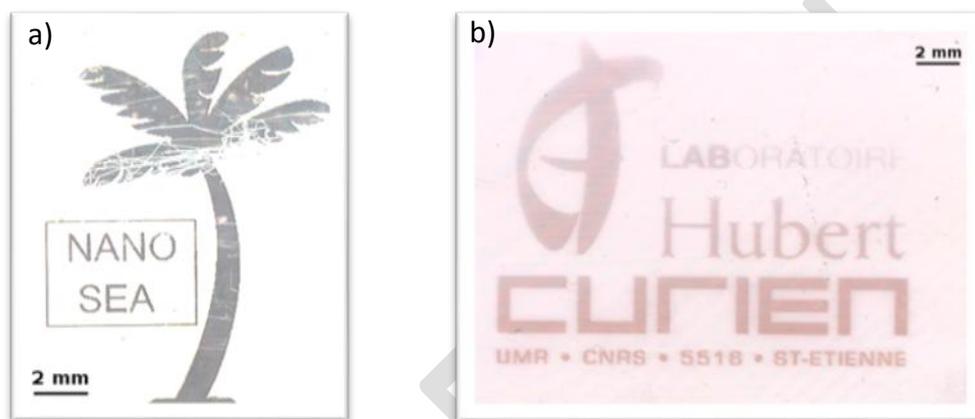


Figure 2.30 : Images optiques en transmission de motifs complexes réalisées par photo-inscription en continu à 244 nm avec une intensité de 5.2 kW/cm^2 et une vitesse de 1 mm.s^{-1} (a) ou avec une intensité de 2 kW/cm^2 et une vitesse de 3 mm.s^{-1} (b)

3 Application du marquage reconfigurable à l'authentification de produits

Les fluctuations laser de type speckle (interaction d'une lumière cohérente avec une structure inhomogène), permettent l'obtention d'un signal physique difficile à reproduire [87] qui peut être utilisé pour authentifier des produits [72], [75], [80]. Grâce à l'unicité et à la non reproductibilité du signal, il est possible d'extraire une signature fiable permettant de discriminer les signaux authentiques des signaux contrefaits. Cependant, à cause de la forte sensibilité du phénomène d'interférences aux conditions d'insolation et d'observation, authentifier un produit requiert un système de lecture complexe qui limite son utilisation (nécessité d'avoir une bonne reproductibilité du positionnement de la source, du détecteur et de l'échantillon).

Dans cette étude, nous montrerons que les fluctuations laser de type speckle peuvent être utilisées pour photo-inscrire une texture aléatoire reconfigurable sur des supports homogènes et que ces textures peuvent être utilisées pour authentifier les objets sur lesquelles elles sont réalisées à l'aide d'un système de lecture simple. Dans une première partie, nous détaillerons l'inscription, l'effacement et le remplacement d'une texture sur un substrat de verre, puis nous verrons dans une seconde et une troisième parties, comment authentifier un produit à partir de ces textures et d'une simple acquisition d'image. La stabilité et la reproductibilité de la méthode seront aussi testées dans une dernière partie.

3.1 Inscription et effacement de motifs aléatoires reconfigurables optiquement

Les textures aléatoires sont réalisées par insolation des films avec une lumière UV dont la fluctuation d'intensité est de type speckle. Cette figure d'interférence est obtenue en insolant un échantillon diffusant (échantillon de silice de 1mm d'épaisseur sablé sur les deux faces de façon à ne pas transmettre le faisceau direct) avec un faisceau laser émettant à 244 nm filtré avec un diaphragme pour supprimer les lobes secondaires de celui-ci. La Figure 2.31 illustre le schéma du montage ainsi qu'une figure de type speckle obtenue sur une caméra CCD lors de l'interaction de l'échantillon diffusant avec un faisceau laser visible émettant à 488nm. Cette longueur d'onde a été utilisée à la place de 244 nm pour illustration ; le détecteur n'étant pas sensible à l'UV. L'image montre que la répartition en intensité fluctue et que seules les zones de plus forte intensité (grains clairs) pourront réduire les sels d'argent en nanoparticules métalliques. Toutefois, La taille de ces zones dépend de la distance entre l'échantillon diffusant et la surface à inscrire, de la longueur d'onde et du diamètre du faisceau sur l'échantillon diffusant [87].

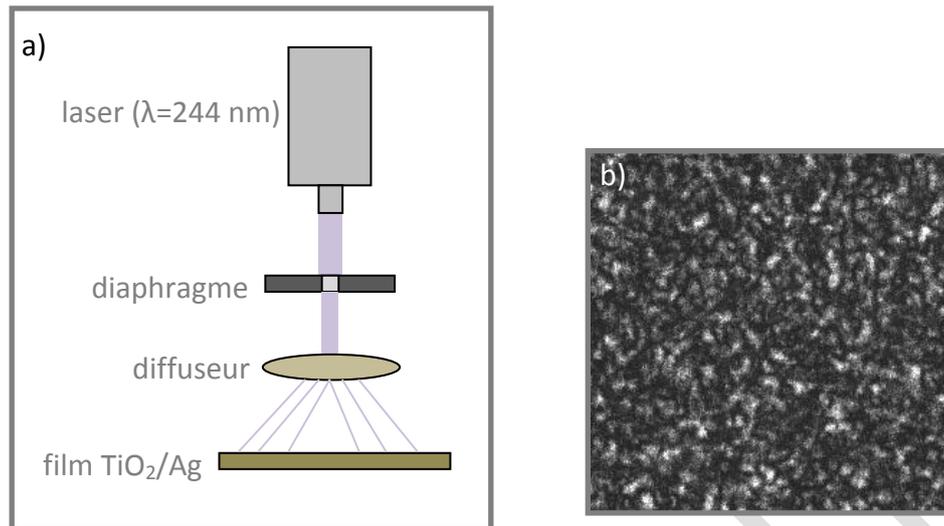


Figure 2.31: Schéma du montage utilisé pour l'inscription de motif aléatoire (a) et exemple de figure de type speckle enregistrée sur une caméra CDD (b). Les zones les plus claires correspondent aux zones de plus forte intensité et les zones les plus sombres aux zones de plus faible intensité.

Dans cette étude le diamètre du faisceau sur le diffuseur a été fixé à 1,4 mm. Après insolation à 244 nm d'un film placé à environ 2 mm du diffuseur avec une intensité de $1,3 \text{ kW.cm}^{-2}$ et un temps d'exposition de 30 s, la figure de type speckle est photo-inscrite sur le film mésoporeux d'oxyde de titane imprégné argent (Figure 2.32(a)), générant une texture aléatoire colorée sur le support. La texture obtenue dépend des conditions d'insolation (angle d'incidence, intensité ...), de l'inhomogénéité du diffuseur et des caractéristiques du film (concentration en sels d'argent, porosité, épaisseur ...). Cette texture peut être complètement effacée si elle est insolé pendant 5 mn (temps non optimisé) avec un laser Ar multi-raies (émettant simultanément à 476,5 nm, 488 nm, 496,5 nm, 514 nm) présentant une intensité de 14 W.cm^{-2} au niveau de l'échantillon (Figure 2.32(b)). Comme dans le cas des motifs reconfigurables, on constate de manière visuelle qu'aucune trace de la texture précédente n'est visible après effacement. Une fois la texture effacée, l'inscription d'une nouvelle texture au même endroit est possible en ré-insolant le film à 244 nm dans les mêmes conditions expérimentales que précédemment (Figure 2.32(c)), mais en décalant légèrement le diffuseur pour obtenir une nouvelle figure de type speckle. Il reste à vérifier formellement qu'aucune corrélation n'existe entre deux textures successivement inscrites au même endroit.

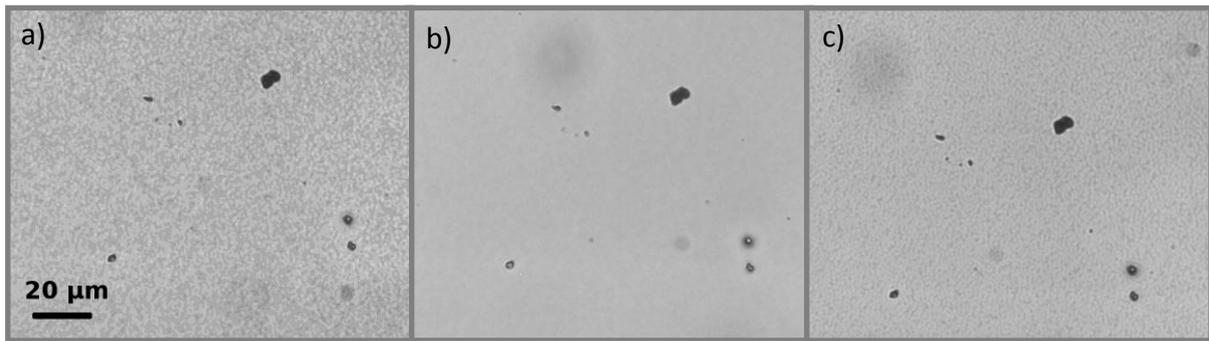


Figure 2.32 : Images en réflexion de la même surface d'un film de TiO_2 mésoporeux imprégné d'argent après inscription (a), effacement (b) et réinscription (c) d'une figure de type speckle

3.2 Lecture de l'information photo-induite

De façon à traiter correctement les informations et pour pouvoir palier le problème de recalage, les photo-inscriptions ont été réalisées dans des zones comportant deux trous gravés sur le substrat de verre. Les trous sont de forme circulaire, leurs diamètres sont d'environ $20 \mu\text{m}$ et la distance de centre à centre est d'environ $466 \mu\text{m}$. Le système de lecture consiste à enregistrer l'image de la texture avec les deux trous de repère. Pour cela, nous avons utilisé un microscope Leica FTM 200 en réflexion avec un objectif x 20 équipé d'une caméra Leica DFC 320. Le grandissement a été choisi de façon à obtenir une résolution d'environ 8 pixels par grain tout en conservant les points repères dans le champ de l'image (Figure 2.33). Toute région d'intérêt doit être située dans le champ d'observation et dans la profondeur de champ du système de lecture pour pouvoir être authentifiée. Néanmoins, toute autre configuration de photo-inscription ou de lecture peut être utilisée à condition que les grains de speckle soient bien résolus et que leur nombre par image soit statistiquement suffisant.

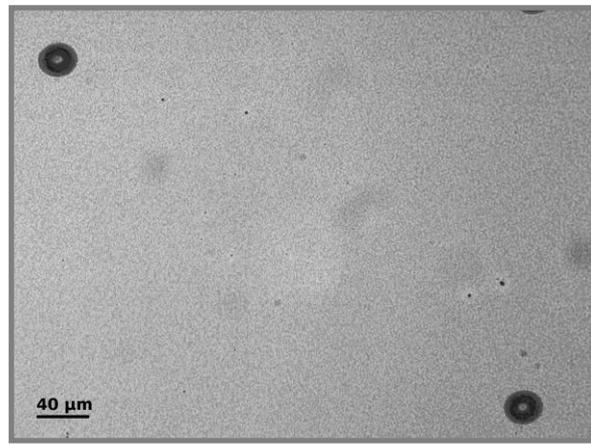


Figure 2.33 : Image à travers le système de lecture d'une inscription aléatoire photo-induite avec les deux points de repère

3.3 Authentification du produit

L'authentification d'un produit est réalisée par la comparaison de deux images (une issue du produit à analyser et l'autre d'une base de données de référence) à l'aide d'une mesure de corrélation. Cette comparaison n'est possible que si les images sont orientées de la même façon. Nous verrons donc comment en partant des images prises par le système de lecture, il est possible d'obtenir des images orientées de la même façon et comment, à partir de celles-ci, nous pouvons authentifier un marquage aléatoire authentique et discriminer un marquage aléatoire contrefait d'un authentique.

3.3.1 Le recalage

L'objectif de ce traitement est de repositionner correctement une image par rapport à une autre de façon à pouvoir comparer une même zone quelle que soit la position de l'échantillon lors de son acquisition (il faut cependant que le marquage soit dans le champ du système de lecture). Ce traitement d'image est particulièrement important car l'efficacité du système d'authentification dépend de sa précision. Si deux images du même motif sont mal recalées, le traitement permettant leur authentification peut les considérer comme différentes alors qu'en réalité elles ne le sont pas, l'inverse est aussi possible. Dans le système réalisé, l'image à analyser est toujours recalée sur l'image de référence (image enregistrée lors de la fabrication du produit et stockée dans une base donnée).

Le recalage que nous avons utilisé est basé sur la recherche des centres des deux ellipses situées sur le bord haut-gauche et bas-droit de chaque image (la Figure 2.34(a) illustre ce traitement sur une ellipse). La connaissance approximative de la position de ces ellipses permet d'accélérer les traitements numériques en restreignant les recherches et les

traitements à deux zones de l'image (bord haut-gauche et bas-droit) dont la taille est de 600 x 600 pixels. Un seuillage automatique par maximisation de la variance interclasse permet ensuite de localiser les ellipses dans chacune des deux zones en les faisant apparaître blanches sur un fond noir (Figure 2.34(b)). Toutefois, après seuillage, les images ne donnent pas directement une ellipse sur un fond noir. Des taches blanches à l'extérieur de l'ellipse (liées à des poussières ou des défauts à la surface du film) et des zones noires à l'intérieur de celle-ci (liées aux zones plus claires à l'intérieur de l'ellipse) sont encore présentes

Pour déterminer correctement le centre de gravité des ellipses, ces défauts doivent être éliminés. Un filtrage consistant à ne garder que les objets ayant une connexité (au sens d'un voisinage V_8) de plus de 4 000 pixels a été utilisé pour supprimer les petites taches blanches en dehors de l'ellipse (Figure 2.34(c)). Le défaut situé au centre de l'ellipse est quant à lui éliminé en rebouchant le centre des ellipses avec la fonction « *imfill* » de *matlab* (Figure 2.34(d)) qui permet de remplir des régions ou des trous dans une image.

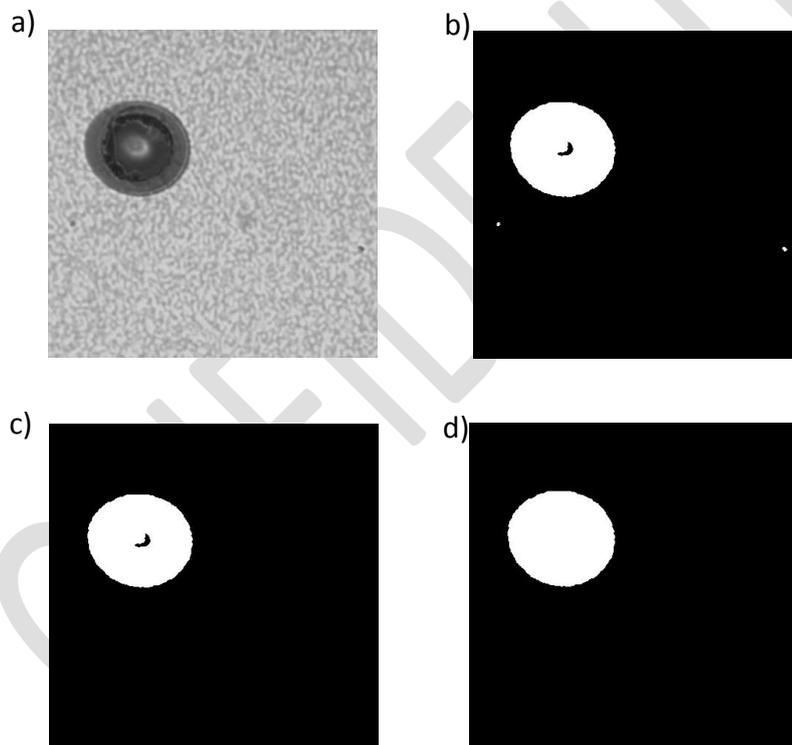


Figure 2.34 : Images d'une zone de 600 x 600 pixels contenant une ellipse avant seuillage (a), après seuillage (b), après filtrage des défauts ayant une connexité inférieure à 4 000 pixels (c) et après rebouchage du centre des ellipses (d)

Le centre des ellipses est ensuite déterminé en ajustant le contour de l'objet avec une ellipse théorique. Cependant, à cause de la pixellisation de l'image qui conduit à une discrétisation de la forme, la connaissance exacte du contour n'est pas possible (le contour exact de l'objet peut être compris entre deux pixels). Un intervalle incluant le contour peut par contre être déterminé en recherchant la « frontière » intérieure (pixels appartenant à l'objet et ayant au moins un voisin appartenant au fond) et la « frontière » extérieure de l'objet (pixels appartenant au fond et ayant au moins un voisin appartenant à l'objet).

Cette recherche a été réalisée en utilisant un voisinage V_4 de façon à obtenir 8 directions possibles  (un voisinage V_8 n'aurait donné que 4 directions ). Une fois les points déterminés, une ellipse théorique est ajustée (fonction *fitellipse* de *matlab*) de façon à obtenir une erreur quadratique avec tous les points inférieures à 10^{-4} (Figure 2.35).

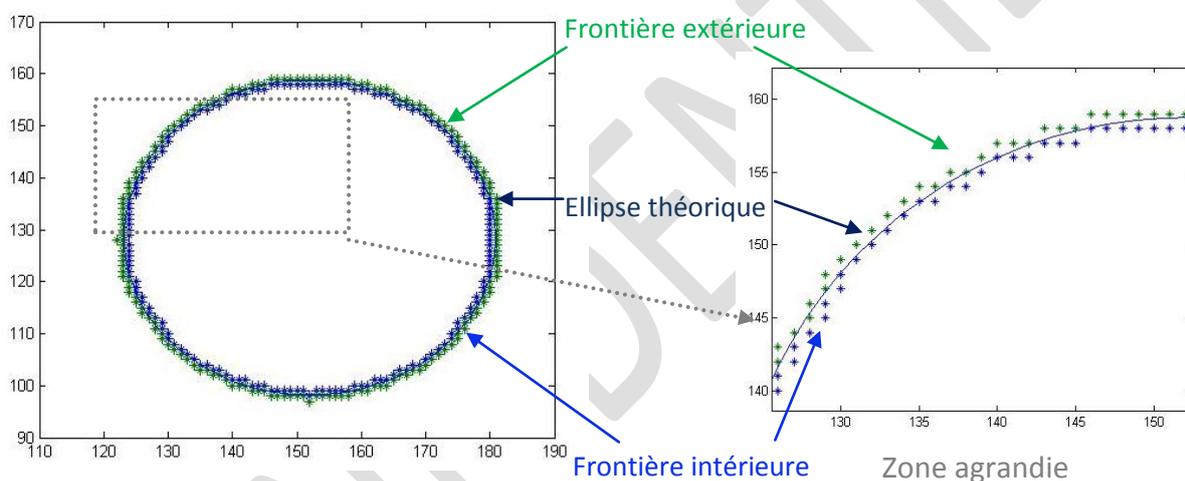


Figure 2.35: Ajustement des « frontières » intérieure et extérieure de l'objet avec une ellipse théorique

A partir de cette ellipse théorique, il est alors possible de déterminer le centre de l'objet avec une précision subpixel. Cette précision est nécessaire pour authentifier correctement un marquage car elle limite le nombre de fausses non-affectations (produit authentique considéré comme un imposteur par le système d'authentification) liées à une déformation du motif lors de son recalage. Les coordonnées des centres des ellipses sont utilisées pour estimer la transformation permettant de passer de l'image à analyser, à l'image de référence. Nous avons alors supposé que les transformations pouvant se produire entre les deux images ne pouvaient être qu'une transformation linéaire composée d'un mélange de rotation, translation et d'homothétie. La fonction *cp2tform* de *matlab* a été utilisée pour la déterminer. La connaissance de cette transformation permet de recalculer

l'image à analyser sur l'image de référence par application de celle-ci à la totalité de l'image à analyser. La Figure 2.36 illustre ce procédé de recalage sur les images d'un même marquage aléatoire enregistré dans deux configurations différentes. Après recalage, il est difficile de constater visuellement si les motifs de l'image recalée et de l'image de référence se superposent. L'image résultant de la soustraction de l'image de référence par l'image recalée permet d'observer cette superposition en affichant une image sombre (niveau de gris proche de 0) dans les zones recalées. Toutefois, une variation de niveaux de gris est aussi visible dans cette zone.

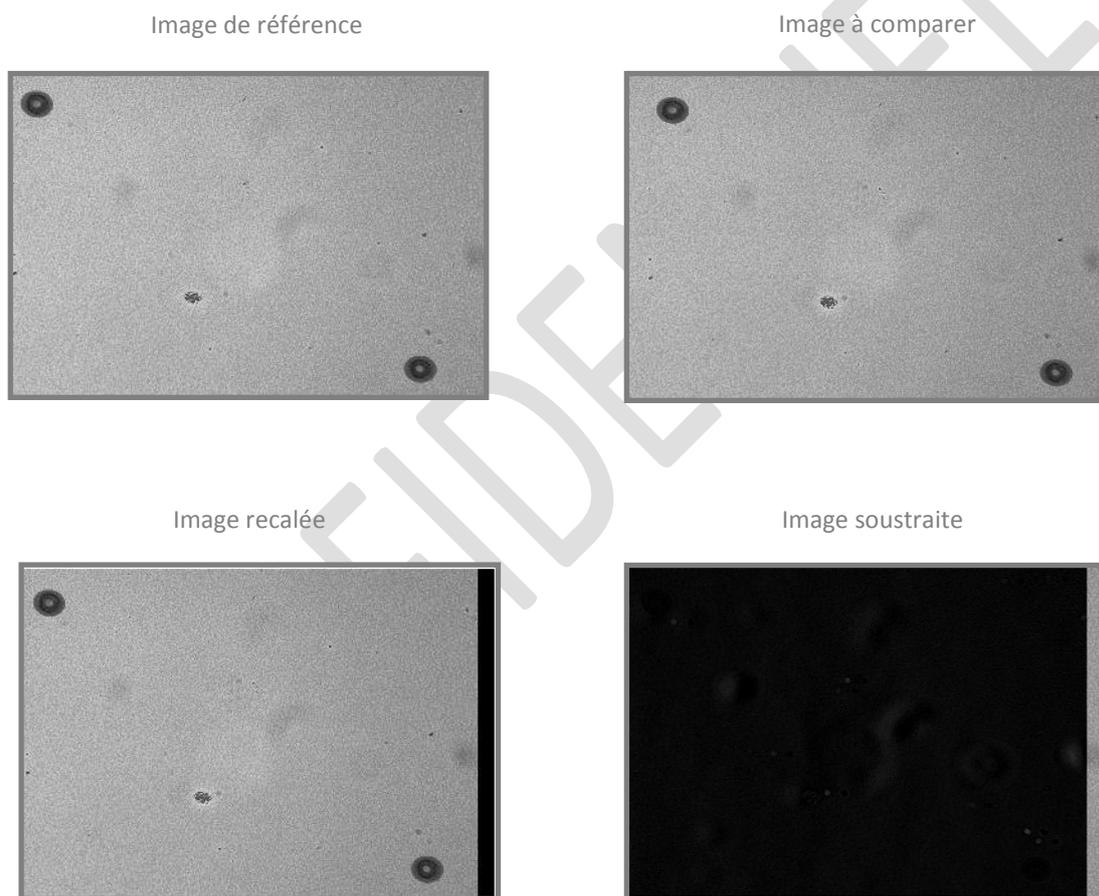


Figure 2.36 : Illustration du recalage sur deux images du même motif enregistrées dans deux configurations différentes.

Cette variation est liée à la présence sur les images de structures indépendantes de la position des centres des ellipses. Ces structures proviennent de poussières présentes sur le système de lecture qui génère lors de l'acquisition un motif fixe sur l'image quelle que soit la nature et la position de l'objet. La Figure 2.37(a) illustre ceci en montrant le même motif que

précédemment sur l'image d'une lame de verre prise à travers le système de lecture. La réalisation d'une authentification dans ces zones est donc assujettie à une plus grande part d'erreurs. Pour éviter ces zones, deux solutions sont possibles : soustraire à chaque image une image contenant uniquement les poussières ou sélectionner une zone de l'image ne contenant pas de défaut. Dans cette étude, nous avons choisi de sélectionner une zone de l'image sans défaut pour deux raisons. Cette méthode permet de limiter les modifications de l'image par les traitements numériques (image plus proche de la structure aléatoire photo-inscrite) et permet aussi de tester la fiabilité du système dans le cas de petites inscriptions (conditions plus proches des conditions d'utilisation). La taille des zones sélectionnées pour l'authentification a été de 64 x 128 pixels (Figure 2.37(b)). Néanmoins toute autre taille d'image peut être utilisée à condition qu'elle contienne suffisamment de grains de texture pour être discriminante.



Figure 2.37 : Image d'une lame de verre à travers le système de lecture (a) et image d'une zone de 64 x 128 pixels sélectionnée pour l'authentification (b).

3.3.2 Mesures de corrélation

Les échantillons de 64 x 128 pixels extraits des images à analyser sont ensuite comparés, par une mesure de corrélation, à une base de données contenant l'image de référence de cette même zone (image enregistrée lors de sa fabrication). Lors de la comparaison de deux images identiques ou différentes, la fonction de corrélation est maximale au centre, c'est-à-dire au moment où les images sont parfaitement alignées l'une sur l'autre. La valeur du coefficient de corrélation à cette position peut donc servir comme indicateur pour savoir si deux images se ressemblent ou non. Dans le cas de deux images identiques (Figure 2.38(a)), la valeur absolue du coefficient de corrélation donne une valeur proche de 1 alors que dans le cas de deux images différentes (Figure 2.38(b)) la valeur absolue du coefficient de corrélation donne une valeur proche de 0. Cette mesure a été

réalisée en prenant la valeur absolue de la fonction *corr2* de *matlab*. Cette fonction calcule le coefficient de corrélation au centre de deux images en utilisant l'équation 2.1.

$$r = \frac{\sum_m \sum_n (I_{mn}^{ref} - \overline{I^{ref}})(I_{mn}^{recal} - \overline{I^{recal}})}{\sqrt{(\sum_m \sum_n (I_{mn}^{ref} - \overline{I^{ref}})^2)(\sum_m \sum_n (I_{mn}^{recal} - \overline{I^{recal}})^2)}} \quad (2.1)$$

Avec I^{ref} la matrice de l'image de référence, I^{recal} la matrice de l'image recalée, $\overline{I^{ref}}$ la moyenne de la matrice de l'image de référence et $\overline{I^{recal}}$ la moyenne de la matrice de l'image recalée.

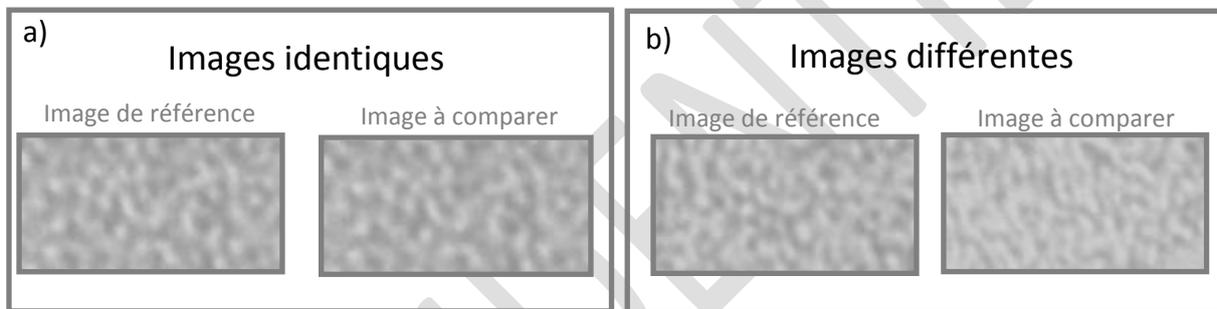


Figure 2.38 : Illustration de comparaisons d'images identiques (a) et d'images différentes (b)

Cette mesure a ensuite été testée sur 2 814 comparaisons de motifs identiques (1 407 images de référence ont été comparées au même motif après deux nouvelles acquisitions par le système de lecture) et sur 4 160 comparaisons de textures différentes (65 images de références ont été individuellement comparées à 64 images de textures différentes). L'histogramme obtenu après ces comparaisons (Figure 2.39) montre clairement une séparation entre les distributions issues de la comparaison d'images identiques et celles issues de la comparaison d'images différentes. Un calcul d'indice de séparation utilisant l'équation (2.2) peut alors être utilisé pour quantifier ces résultats [88]. Dans le cadre des systèmes biométriques cet indice doit être supérieur à 12 pour que le système soit validé comme étant capable de discriminer de manière certaine un authentique d'un imposteur. La valeur de cet indice sur nos mesures est de 10,29. Bien que cette valeur soit inférieure à 12, ceci confirme quand même une bonne capacité de discrimination du système et plus particulièrement des textures aléatoires.

$$d' = \frac{|\mu_1 - \mu_2|}{\sqrt{\frac{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}{2}}} \quad (2.2)$$

Avec μ_1, μ_2 les moyennes et σ_1, σ_2 les écarts types des distributions.

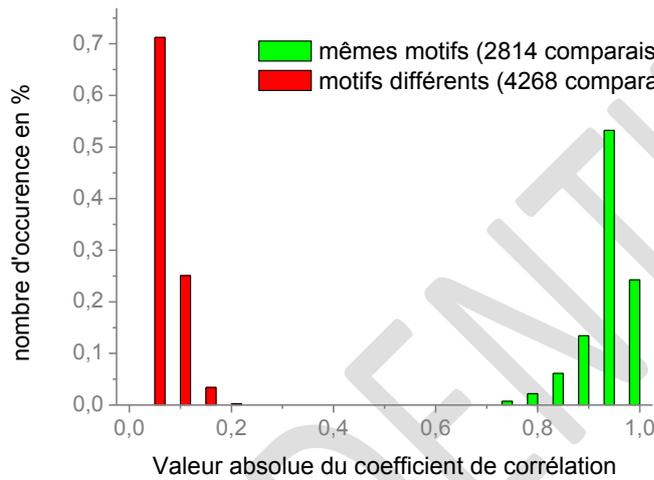


Figure 2.39 : Histogramme issu des mesures obtenues par le système d'authentification sur des comparaisons de motifs identiques ou différents

3.4 Reproductibilité de la méthode de photo-inscriptions reconfigurables

Après avoir vérifié que le système d'authentification et de photo-inscription était bien discriminant, nous avons testé la reproductibilité de la méthode de photo-inscription de textures reconfigurables. Des cycles d'écriture/effacement ont été réalisés en insolvant la même zone de l'échantillon dans des conditions d'insolation identiques pour chaque inscription et effacement (conditions décrites dans la section 3.5), seul l'échantillon diffusant a été tourné et translaté à chaque nouvelle inscription. Les cycles ont été répétés deux fois et chaque texture a été caractérisée par le système d'authentification. Après réinscription les textures sont toutes visuellement différentes et aucune variation de contraste n'est visible sur les images issues du système de lecture (Figure 2.40).



Figure 2.40 : Exemple de cycle d'écriture (1, 3, 5)/effacement (2, 4) réalisé sur une même zone d'un échantillon.

De façon à comparer quantitativement ces photo-inscriptions, ces cycles ont été réalisés sur 1 400 zones différentes. Sur chaque zone, le premier motif a été comparé aux deux autres (cycle 1) et le deuxième motif photo-inscrit a été comparé au troisième (cycle 2). Les résultats obtenus sont reportés dans l'histogramme de la Figure 2.41. Comme dans le cas des imposteurs, les distributions issues des cycles sont clairement séparées de celles des textures identiques. L'indice de séparation les comparant est alors de 10,28 pour les cycles 1 et de 9,68 pour les cycles 2. Ces valeurs confirment donc que les nouveaux motifs photo-générés sont bien différents les uns des autres. Une faible baisse de l'indice de séparation est obtenue lors de la comparaison du deuxième motif avec le troisième. Cette baisse peut être liée à une dégradation du caractère discriminant des photo-inscriptions mais il est plus probable qu'elle soit due au plus faible nombre de comparaisons, ce qui pourrait influencer légèrement l'écart type et la moyenne de cette distribution.

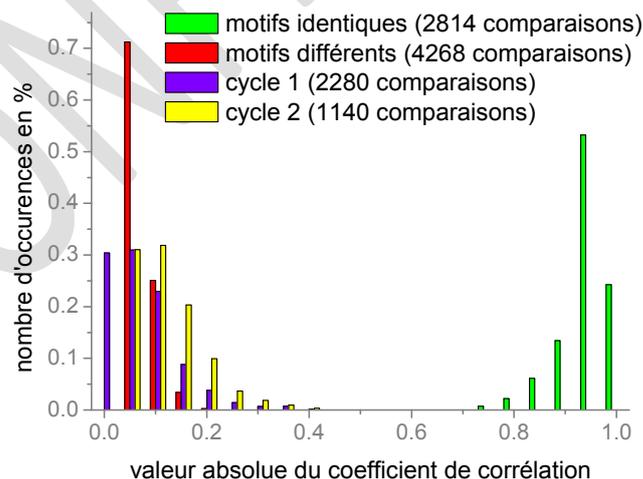


Figure 2.41 : Histogrammes obtenus par le système d'authentification dans le cas de cycles d'écriture/effacement

3.5 Stabilité du système dans le temps

La stabilité des inscriptions au cours du temps a été testée sur des marquages stockés dans un tiroir de bureau durant 26 mois après leur acquisition dans la base de données. Visuellement, les motifs restent clairement reconnaissables malgré une légère dégradation du contraste qui peut être attribuée à la formation spontanée de nanoparticules dans les zones non insolées (Figure 2.42(a), (b)). Cette étude a été réalisée sur 110 comparaisons de motifs identiques (110 images de référence ont été comparées à l'image du même motif 26 mois plus tard). Le nombre de comparaisons ne permet pas de tracer un histogramme mais il permet cependant d'obtenir une moyenne et un écart type qui peuvent être utilisés pour calculer un indice de séparation comparant la distribution des motifs non identiques avec celle des motifs identiques après 2 ans. La valeur de l'indice obtenue est supérieure à 10, ce qui indique que les motifs photo-inscrits restent relativement discriminant même 2 ans après leur photo-inscription.

La réversibilité des inscriptions a aussi été testée sur des inscriptions photo-inscrites 26 mois plus tôt. 110 inscriptions stockées dans les mêmes conditions que précédemment ont été effacées 26 mois plus tard pour photo-inscrire de nouvelles textures (Figure 2.42(c), (d)). Les conditions d'effacement utilisées ont toutefois différées de celles décrites dans la section 3.4 car les inscriptions ont été plus difficiles à effacer (insolation avec une intensité de 11 W.cm^{-2} durant 1 heure). Les conditions de photo-inscriptions sont quant à elles restées les mêmes. Après effacement, aucune trace de la texture précédente n'est visible et une nouvelle texture peut être inscrite au même endroit, cependant son contraste se trouve légèrement atténué. La valeur de l'indice de séparation comparant la distribution des textures identiques avec celle des textures non identiques après 2 ans est supérieure à 10. Il est donc possible de photo-inscrire des motifs différents du motif initial même 2 ans après la première inscription.

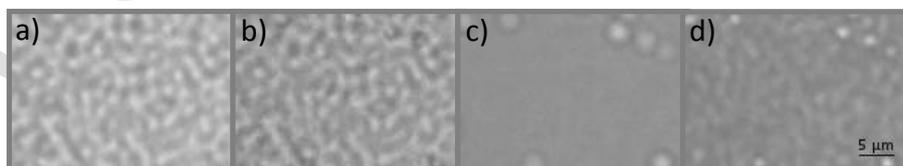


Figure 2.42 : Images de la même zone après effacement et inscription d'un nouveau motif 2 ans plus tard. Image de référence (a), image du même motif après 2ans (b), image après effacement (c) et image de la nouvelle inscription (d).

3.6 Conclusion sur l'application du marquage reconfigurable à l'authentification de produits

Les photo-inscriptions de textures aléatoires reconfigurables, obtenues par insolation des films TiO_2/Ag avec une figure de speckle donnée par un laser UV, peuvent être utilisées pour identifier correctement et simplement un produit. Ces photo-inscriptions permettent de surmonter la difficulté des systèmes existants sur la lecture des motifs de type speckle (difficulté pour réobtenir la même figure de speckle) en enregistrant directement cette figure sur l'échantillon. Ceci permet d'utiliser un simple système de prise d'images pour la lecture de l'information. Malgré l'inscription de la figure de type speckle sur une surface en deux dimensions (perte d'un degré de liberté par rapport au système usuellement utilisé), le marquage reste discriminant et permet d'authentifier correctement un produit. Ce marquage est stable au moins deux ans et permet une mise à jour des inscriptions qui peut être utile par exemple en cas de corruption de la base de données ou pour indiquer les différentes étapes d'un processus de fabrication. Des codes d'identification supplémentaires et d'autres méthodes numériques peuvent cependant être envisagés pour une utilisation plus pratique et plus robuste.

4 Conclusion

Les films mésoporeux d'oxyde de titane permettent de contrôler la taille des nanoparticules lors d'une réduction UV, en limitant la croissance de celles-ci à la taille des pores. Ce contrôle rend possible le blanchiment des films en lumière monochromatique visible à condition que sa longueur d'onde soit comprise dans la bande de résonance plasmon des nanoparticules. Ce blanchiment est d'autant plus rapide que la longueur d'onde incidente est proche du maximum de résonance plasmon de surface des nanoparticules et que son intensité est élevée. Durant l'effacement des motifs un comportement dichroïque est aussi observé sur les spectres d'absorbance mesurés en lumière polarisée. Ce dichroïsme semble provenir d'une plus grande oxydation des nanoparticules métalliques dans la direction parallèle à la polarisation laser. L'utilisation d'une lumière monochromatique permet aussi d'utiliser la cohérence spatiale des lasers pour réduire davantage le diamètre des zones insolées. Il devient alors possible de réaliser des effacements locaux qui peuvent servir dans le domaine de la traçabilité sécurisée pour dissimuler de l'information dans un motif.

Ces films mésoporeux permettent aussi une augmentation très significative de la durée de vie des photo-inscriptions puisque celles-ci peuvent être conservées au moins deux ans sans précaution particulière. Cette augmentation de longévité des échantillons est

probablement due à la faible porosité des films qui permet de limiter l'oxydation des particules par l'oxygène ambiant.

Des inscriptions reconfigurables peuvent être effectuées sur ces films. Les cycles d'écriture et d'effacement réalisés dans une même zone d'un film attestent que chaque nouveau motif présente un contraste similaire au motif initial et qu'aucune trace des motifs précédents n'est décelable sur les nouvelles photo-inscriptions. Ce comportement reste valable même si l'effacement et la nouvelle inscription sont réalisés deux ans après l'insolation du premier motif. Lors de l'effacement des motifs, aucune information des inscriptions précédentes n'est décelable. Des analyses EDX réalisées lors d'insolation UV ou visible, ont montré que l'argent migre dans le film au cours de ces insolations. Lors d'une insolation UV localisées, l'argent migre vers les zones de plus forte intensité et durant les insolations visibles il se redisperse dans le film de façon à retrouver une concentration spatialement homogène.

Après blanchiment des films, des nanoparticules d'argent métalliques demeurent dans le film bien que ceux-ci ne manifestent aucune bande de résonance plasmon dans le domaine du visible. Ces nanoparticules sont suspectées d'être des particules cœur/coquille dont le cœur est en argent et la coquille en un matériau haut indice. De l'oxyde d'argent Ag_2O cristallisé a été trouvé sur certaines particules, ce qui laisse supposer qu'on peut trouver des particules d'argent entourées d'une coquille d'oxyde. On trouve aussi des nanocristaux de TiO_2 autour de particules d'argent détectables uniquement par MET HR. Le nombre de ces nanocristaux reste suffisamment faible pour qu'ils ne soient pas décelables par microspectroscopie Raman, par diffraction des rayons X ou par microscopie à force atomique (voir le chapitre suivant pour comprendre le rôle de l'AFM dans la détection de la cristallisation de la matrice de TiO_2).

Grâce à la forte sensibilité des films aux insolations UV, il est possible de photo-inscrire n'importe quel type de motif en utilisant soit une écriture point à point, soit une écriture en continu. L'écriture en continu présente l'avantage de réaliser les motifs beaucoup plus rapidement que l'écriture point à point tout en garantissant la même résolution (résolution donnée par le diamètre de la zone insolée). Des motifs de taille centimétrique avec une résolution micrométrique peuvent alors être inscrits en une dizaine de minutes.

Ces films semblent aussi très prometteurs dans le domaine de l'authentification de produits car ils permettent la photo-inscription de textures aléatoires reconfigurables fortement discriminantes. Ces marquages sont stables et faciles à acquérir tout en permettant une mise à jour des inscriptions en cas de corruption de la base de données ou durant les différentes étapes de fabrication d'un produit.