



A REVIEW OF AND TRENDS IN THE ASSESSMENT OF THE SEQUENCE WITH WHICH GRAPHICAL ELEMENTS ARE APPLIED TO A DOCUMENT

Zuzanna BURA^{1,2} , Marcin KUNICKI¹ 

¹ *Institute of Forensic Research, Kraków, Poland*

² *Faculty of Law and Administration, University of Silesia, Katowice, Poland*

Abstract

This article presents an overview of the methods and techniques used to analyze the order in which graphic elements are applied to the surface of paper. This is one of the aspects of forensic document examination that allows to determine which handwritten entries or prints were made primarily and which were secondary. The study begins with a discussion of the microscopic methods that dominated in the 1960s, then presents spectroscopic techniques, as well as the use of the ESDA electrostatic apparatus. Finally, the latest achievements in the analysis of intersecting graphic lines using 3D modelling techniques are presented. The constant development of this field of research shows an increasing demand for finding the best methods. The results presented by many scientists are supported by numerous blind tests and attempts to identify all possible factors influencing the result. However, despite the predominance of non-destructive techniques, the most effective method has not yet been identified.

Keywords

Forensic documents examinations; Order of intersecting lines; Methodology review; Cross-sectional studies.

Received 9 July 2024; accepted 27 August 2024

1. Introduction

Despite the digital transformation of society, the forensic assessment of documents continues to play an important role. This is due to how common it is to find the presence of documents in our everyday surroundings, ranging from bills of exchange and receipts, through various contracts to last wills. Although the form of documents has changed over the centuries, their function as a source of information has remained the same. From a legal perspective, a document is defined as ‘any object or other written carrier of information associated with a particular regulation or which, due to its contents, constitutes evidence of a legal act, a legal relationship or legally significant circumstances’ (Article 115(14) of the Polish Criminal Code) or as

‘a carrier of information that allows the user to view its contents’ (Article 77(3) of the Polish Civil Code). This definition is related to the traditional interpretation of a document, which comes from the Latin word *documentum*, from *docere* meaning ‘to teach’, and *mens* which denotes an expression of intent by a particular person that causes specific situations to result from specific actions [1]. The forensic definition of a document is slightly different: ‘an object with various forms of legally significant contents. It is only life and civilizational progress that either limits or rather expands the real forms of a document [2]. Because the definitions quoted above do not limit documents to tangible objects made from paper, new avenues for development due to digitisation and social development are opening up in this branch of forensic science.

One of the subdomains of document analysis is determining the order in which graphic elements are applied to paper. Research in this area is aimed at detecting fraud involving the overwriting of existing entries, which helps investigators to determine whether a signature was written *in blanco* or to recover the original contents of a document. However, the lack of a universal methodology in document analysis remains a challenge. For years, researchers have thoroughly examined this subject and continue to propose innovative solutions. Many studies have been published in recent years that describe various techniques. The aim of this article is to systematise this knowledge and highlight the most important strategies, and to provide a comprehensive review of the methodologies developed by experts in document analysis.

This study uses the following divisions:

- According to the equipment used:
 - Microscope,
 - Electrostatic detection apparatus (ESDA[®]).
- According to the technique used:
 - Optical assessment with luminescence,
 - 3D modelling,
 - Spectroscopy
 - including Raman spectroscopy,
 - Analysis of elemental composition

and other methods that do not belong to any of the above categories.

Although some of those techniques described in the literature display a high potential for an accurate determination of the sequence of graphical elements on a document, there are cases where the use of these techniques cause irreversible damage or destruction of the document or, even worse, they result in false positive outcomes.

2. Methods of assessing intersecting graphical lines

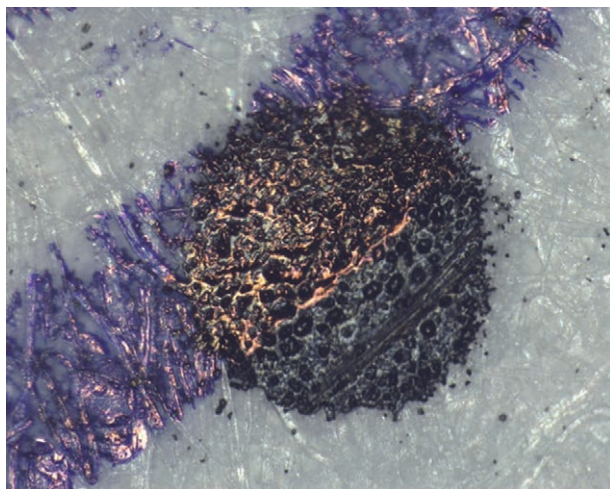
2.1. Microscopy

Microscopic methods are the oldest, most efficient and most popular techniques for assessing intersecting graphical lines. Documents are analysed using an optical or a digital microscope. In the case of the former, which has been in use since 1590, the image is captured by the lenses and assessed directly by the operator. In turn, digital microscopy was developed nearly 400 years later, in 1986. This technique produces images that are processed by a camera and displayed on a monitor, which allows for high-resolution imaging.

As early as in 1963, Bradley [3] analysed intersecting lines written with pencils using a stereoscopic microscope under different illumination angles and at a 30x magnification. Bradley primarily analysed the continuity of the deposits left by the graphite, which shone in a characteristic manner under specific lighting. Furthermore, when other graphical lines were applied by pressing a pencil strongly against a surface, it was also possible to assess the parallel grooves and indentations created by an interaction between the pencil and the surface. The author recommended using different techniques for the assessment and taking into account factors such as the angle of illumination, type of equipment used and the magnification. Much later, in 2009, Saini et al. [4] suggested combining a digital microscope and a stereoscopic microscope. They analysed intersecting lines applied using gel pens and as a result, a glow was observed in the area where the writing material had been applied to the print. In the same year, Saini et al. published another study [5], in which they described the intersections of the writing lines with prints made using an inkjet printer rather than a laser printer. Blind tests showed that a stereoscopic microscope was highly effective, and the most accurate assessments were achieved for the intersections created using different-coloured writing materials. However, it should be pointed out that the authors did not obtain matching results using a digital microscope. In 2015 Wang et al. [6], and later Wang [7], published follow-up studies to the aforementioned publications. They took into account variables such as the coverage with ink of toner particles spread throughout the document as a result of printing and changes in the appearance of the writing due to thermal processes resulting from the passage of a previously printed sheet through the printing device. Their results were found to be ambiguous, because the samples were created using a ballpoint pen containing black ink, which contrasted poorly with the print. A year later, Lunakova [8] suggested a methodology for assessing the sequence where graphic elements have been applied onto a document using an optical microscope and a micro-zoom camera based on two features, including cases where the graphic lines do not directly intersect the print. The first feature is a static assessment of the random distribution of toner particles in areas outside the print, located at and around the graphical line. A quantitative comparison of the particle distribution across the aforementioned categories of areas allows experts to determine whether the writing was applied before or after the printing. The second feature is a direct assessment based on an observation of

the toner particles and ink on the surface of paper using a high-magnification microscope. Experts analyse the size and position of the toner particles and their interaction with the handwriting. Although this method requires experience and an expensive microscope, it can be used to determine the sequence of graphical elements very effectively. In 2019, Esmacili et al. [9] described the effect of various factors on the microscopic assessment of intersections, including the colour and shade of the writing material, pressure on the surface, printing technique and type of paper. The authors found that an increase in the pressure exerted by the writing instrument increases the likelihood of an accurate assessment of the sequence with which graphical elements were applied. The latest article by Meneghetti et al. focuses on the use of a Hirox RH digital microscope, which can apply a magnification of up to 700x. Their team assessed the intersections between graphical elements created with laser printers and those created with various writing tools based on several features, including cracks in the toner, discontinuities in the graphical lines located immediately beyond an intersection and changes in the colour of the surface of the toner caused by the writing material (the bronzing effect). According to the authors, this last feature is crucial in accurately assessing the sequence of graphical elements. The greatest challenge faced by the researchers was analysing the intersections created with fineliners. As part of the research, a flowchart was also created to assist forensic document examiners in analyzing intersecting lines [10].

Microscopic methods are highly effective and are still among the most popular techniques. However, the obtained images must be analysed by qualified experts.

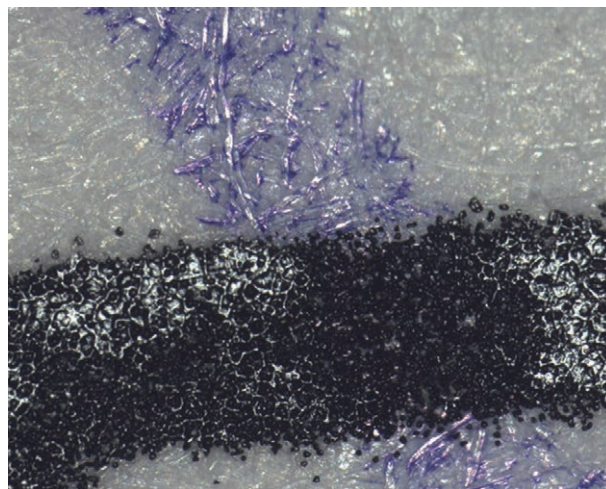


Ballpoint pen ink on toner.

2.2. Electrostatic detection apparatus (ESDA®)

An ESDA® is used to reveal colourless indentations (reliefs) on paper. The device applies charges onto a thin foil adhering to the document, which creates differences in potential between the surface and the indentations, which are then imaged using the black toner that accumulates within them. This device can also determine the sequence of lines that make up the intersections between handwriting applied with a writing instrument and the colourless reliefs.

At the forefront of this research is Radley, the author of many studies, including those published in 1993 and 1995 and in cooperation with Lindblom in 2011 [11, 12, 13]. He took advantage of the fact that the reliefs are imaged by an ESDA® in black, whereas the lines formed with a writing material are imaged in white, and the continuity of either of these two elements indicates that they were applied second. He observed that the detectability of reliefs by an ESDA® was affected by humidity and crumples in the paper. He analysed many samples in a series of studies, but the method proved to be unsatisfactory in terms of its effectiveness, especially if the writing material was applied second. The number of false positives obtained during the aforementioned research suggests that intersections imaged using this technique should be assessed with extreme care. Those studies have indicated various factors that may cause an incorrect assessment of the sequence, including the pressure and drying time of the writing material, type of writing instrument, structure of the paper and surface on which the paper is placed. Furthermore, storing documents inside court files may flatten the reliefs. These findings



Toner on ballpoint pen ink.

Fig. 1. Images of intersections taken using the Nikon AZ100 optical microscope.

were confirmed by Giles [14], who added that it was more effective when used with texts written over reliefs and rarely produced false positives; whereas in the opposite case, determining the sequence was not as simple, due to the black and white lines having a similar intensity when imaged using an ESDA[®]. This technique was addressed in 2008 by Daéid et al. [15], who proposed using the likelihood ratio, i.e., the ratio of the likelihood of observing a result with a given hypothesis and the likelihood of observing a result with an alternative hypothesis, as a factor contributing to an objective assessment. The likelihood ratio compares the likelihood of observing specific evidence under the assumption that the first hypothesis is true and the likelihood of observing the same evidence if the alternative hypothesis is true. The obtained results were affected by the type of writing tool and the type of paper. The authors concluded that the dominance of white in ESDA[®] traces was a more reliable predictor of the sequence of intersections.

In summary, the discussed method mainly focuses on assessing the intersections between invisible reliefs and the reliefs created by pen, which severely limits the scope of the assessment of intersecting graphical lines.

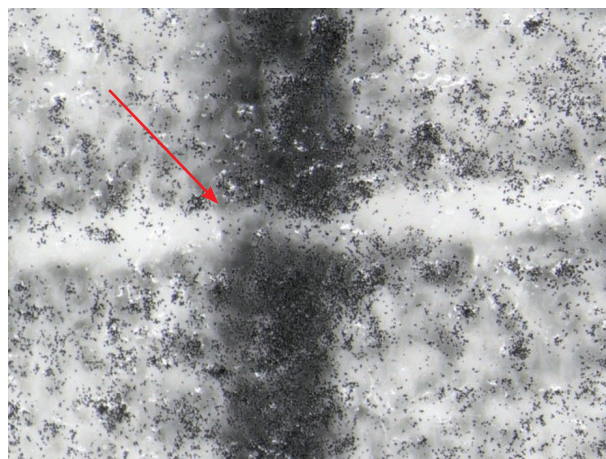
2.3. Optical measurements using luminescence

Luminescence involves the absorbance of electromagnetic radiation by a molecule, which triggers the transfer of electrons to a higher shell, thereby exciting them. After returning to their initial position, the electrons emit a smaller dose of energy than the excitation energy. This change is referred to as the *Stokes shift*.

Radley [16] suggested using luminescence to determine the sequence with which graphical elements were applied to a document as early as in 1982. The method was based on the assumption that the intersecting materials would react differently when illuminated with an excitation beam, as long as one of the lines being examined does not show luminescence under IR light. If the non-light-emitting line is continuous at the intersection point, it means that it was applied second. However, according to the author, the lack of such an effect does not indicate the opposite. Furthermore, other factors also affect the assessment of intersections, including the distribution of the writing material on the surface and the pressure used when writing. The resulting effect is observed in cases where the graphical lines intersect at a 65° or 90° angle. It took until the 21st century for the next publication that addressed luminescence to appear. Rosengarten et al. [17] focused on investigating the intersections between non-fluorescent ballpoint pen ink and printed luminescent ink. Although the authors did not specify the effectiveness of their method, they pointed out its non-destructivity, but also its limitations, i.e., being only able to analyse intersections with different luminescence. In 2016, Li and Ouyang [18] analysed 112 intersections between stamp impressions and prints created with a laser printer. They discovered certain features that facilitated determining the sequence of graphical elements, including discontinuities in the print overlaying the stamp seal impression and the accumulation or adhesiveness of the stamp ink on the surface on the toner. If the fluorescent material covered another material, the intensity of the former did not change compared to the elements that were located outside the



Inkstroke (black line) over a impression (white line).



Impression (white line) over a inkstroke (black line).

Fig. 2. Images of intersections taken using the ESDA 2[®].

intersection, but in the opposite case, its luminescence decreased. The research concluded with blind tests, which demonstrated the precision of the proposed methods of determining the sequence of lines created with a laser printer and the ink applied by a stamp. Their results indicated a high potential of the proposed method. However, it is important to bear in mind the limitations reported by Williamson et al. [19], related to the interactions between writing materials within line intersections, which cause an invisible migration of the particles of a substance, that in turn causes luminescence of the mixture of writing materials. Consequently, Williamson et al. proposed a multi-analytical approach that combined optical and analytical techniques, such as matrix assisted laser desorption and ionisation (MALDI), direct analysis in real-time (DART), liquid chromatography (LC) with mass spectrometry (MS) and thin layer-chromatography (TLC), all of which have proved useful by offering a reliable means of identifying and isolating luminescent compounds. Unfortunately, a disadvantage of these auxiliary methods is that the assessed document must be damaged in order to obtain samples for the analysis. In 2018, Li and Ouyang [20] continued their research, expanding it with new writing materials and creating 220 intersections of heterogenous lines; that is, lines created with different writing instruments. They concluded that an effective assessment requires every line to be continuous at its intersection. This time, during the blind trials, ambiguous or incorrect conclusions were reached in cases where stamp impressions were involved, primarily due to the mixing of substances with a similar polarisation of molecules which, due to the similarity of their physical properties, also exhibit similar optical properties. In a study conducted by Wu et al. in 2019 [21], an improved approach was presented that took into account the complex morphology of the toner and the stamp ink. The authors suggested regulating the length of the excitation wave and using fluorescence filters. They also aimed to improve various parameters, and the final results of their blind tests were positive, i.e., 100% accuracy with a detectability rate of 90% was achieved.

Despite the promising results obtained by the aforementioned authors, an optical analysis employing luminescence still shows a limitation even at the initial conditions stage. Namely, the analysed materials must show differences in luminescence. Consequently, is it impossible to determine the sequence in which homogenous intersections were applied; i.e., intersections created with the same tool or with different materials of the same colour. Furthermore, the evaluator is at risk of errors due to optical illusions.

2.4. 3D modelling

The assessment of the three-dimensional image of a surface primarily involves measuring the reliefs, which are pressure-related impressions created by an interaction between a writing instrument and the surface. The aim of the analysis is to determine which of the intersecting lines is continuous, what indicates that it was applied onto the surface at a later stage.

Images are obtained using various devices and methods, such as profilometry or atomic force microscopy (AFM), where the latter has been described in in two publications from 2001. Kasas et al. [22, 23] reported on the effects of these method, which involve an interaction between a sample and a blade (probe) mounted on the end of a cantilever. Deformations are detected with a laser beam reflecting from the cantilever. When the cantilever is displaced, the angle at which the beam is reflected changes, and the difference is registered on a diode. The authors employed the induction of the oscillation of the cantilever over a sample and its periodical interaction with the sample. The amplitude and frequency of the oscillation depends on the tip used, and the distance between the tip and sample allows researchers to monitor the topography of the surface. The main disadvantages of AFM are the absorption of the writing material by the surface and limited examination space, which may necessitate cutting out part of the document. A year later, Berx and Kinder [24], proposed a new method to avoid the limitations that 3D modelling with AFM entails; namely, interferometric laser profilometry, in which laser beams are employed to analyse surfaces. The measurement is based on the time it takes for a laser beam to travel from the source to the surface of an object. Light waves that meet at the surface of an object overlap due to interference. The method allows for an accurate assessment of differences in the light phases, which in turn enables the measurement of the heights of points located on the surface. In contrast to the previously described technique, it is not necessary to reduce the size of the sample, which means that damaging the document can be avoided. Unfortunately, a major disadvantage is a long data collection time. Spagnolo et al. [25] in 2004 and Spagnolo in 2006 [26] aimed at the development and exploration of 3D imaging techniques. They proposed a method called *conoscopic holography* in combination with the already-known laser profilometry. The former method involves imaging with holograms and monochromatic light, yielding 3D images of optical and surface structures through the use of light interference. The authors demonstrated that such a combination of two

methods is non-destructive and can help to determine the direction of writing. However, the effectiveness of the method depends on the depth of a relief, which is why graphical lines applied with instruments such as a fountain pen or a marker are imaged less frequently, and the assessment of their intersections is difficult. Only a year later, Watson and Watson [27] suggested a new solution called scanning probe microscopy (SPM), which is a group of microscopic techniques that employ extremely small probes (at the nanometer scale) to analyse surfaces on an atomic level. The authors decided to prepare samples on glossy paper due to the flat topography of its surface. They obtained positive results concerning the sequence with which the writing materials were applied. However, they also pointed out limitations related to the area of the imaged surface and time of data collection by the device. A new approach involving 3D imaging was presented in 2012 by Kaur et al. [28], who used a Docucenter Expert comparator. This device is equipped with a scanning module for 2D images on a modified z-axis, which can then be superimposed to create a deep, sharp 3D image. In this case, the authors concluded that the results were insufficient to unambiguously identify the sequence of overlapping lines. Furthermore, they indicated several problems, such as optical illusions, which cause dark lines to always appear to be on top, and blurred edges in lines of a similar colour. In 2018, Mann et al. [29, 30] investigated homogenous lines using a confocal microscope. Scanning with a device of this type involves using a laser beam to collect data about the intensity of light reflected from a sample. Compared to a traditional microscope, a confocal microscope allows for a higher resolution and contrast, by means of cutting off light from outside the focal plane at the entry to the detector. The results obtained from this study suggested that a confocal microscope was a useful tool for the assessment of intersections, and achieved effectiveness in determining the sequence at the level of 84% accuracy, with 4% incorrect readings, for the first of the analysed pens, and 92% for the second pen. A year later, the same team followed up on their research, but this time, only 80% of the samples yielded satisfactory results that allowed the sequence of intersecting graphical elements to be determined. The authors also observed that an excessive amount of accumulated writing material made it difficult to assess the intersections. In another study, the team removed the 'incorrectly assessed' category of sequences. In the same year, Saini et al. [31] evaluated the potential of scanning electron microscopy (SEM) for 3D modelling. It is an advanced technique that uses an electron beam instead of light, which produces images with

a much higher resolution. An electron beam directed at the surface of a sample is reflected towards a detector, which collects the electrons and transforms them into a signal. Consequently, images of the surface of the sample are created, but a fragment of the document is destroyed due to the small work area of the detector. The authors observed that due to the varying viscosity properties of materials, SEM cannot determine the correct sequence of lines applied with gel and with ballpoint pen ink. In 2020, Zhang et al. [32] proposed a new technique called *optical coherence tomography* (OCT), in which cross-sectional images are obtained in a way that is contact-free and without destroying the sample. The technique resembles USG imaging, but uses an infrared light beam rather than sound. The authors analysed intersections between stamp impressions and handwriting, for which they performed 12 blind tests. They observed a limitation of OCT; namely, the penetration of the material is low if the sample absorbs light in the IR range. In 2003, Gould et al. [33] conducted a study using the 3D imaging module in a VSC 8000 HR workstation. The study team took photographs at different illumination angles to generate images with different lightness. The authors also used elastometric sensor imaging (ESI), i.e., a detector created from elastic materials that can undergo deformation in response to various stimuli, such as pressure. Both of the proposed methods are non-destructive. However, when dealing with wet materials, ESI causes them to be deposited on the surface of the membrane because of that researchers recommended caution in order to avoid contamination. Gould et al. also underlined the complementarity of both methods, allowing for the potential of 3D imaging to be realised. The latest method was designed in 2024 by Ascioglu et al. [34] using a 3D Erin Scan 2X scanner, which allows the document to be rotated by 360°. In the blind tests conducted by the authors, the sequence was correctly determined in 23 out of 28 samples. In the remaining 5 samples, the line was applied using a noticeably lower pressure, which led to their incorrect assessment. Therefore, it is recommended to perform a comparative assessment of the depth of the intersecting lines before conducting a proper analysis with this technique.

3D imaging depends strongly on the depth of the reliefs, and consequently, on the pressure exerted by the writing material onto the surface. However, the analysis of graphic lines applied with a water-based writing tool (characterised by its ability to penetrate paper) or those containing very low concentrations of heavy elements is challenging.

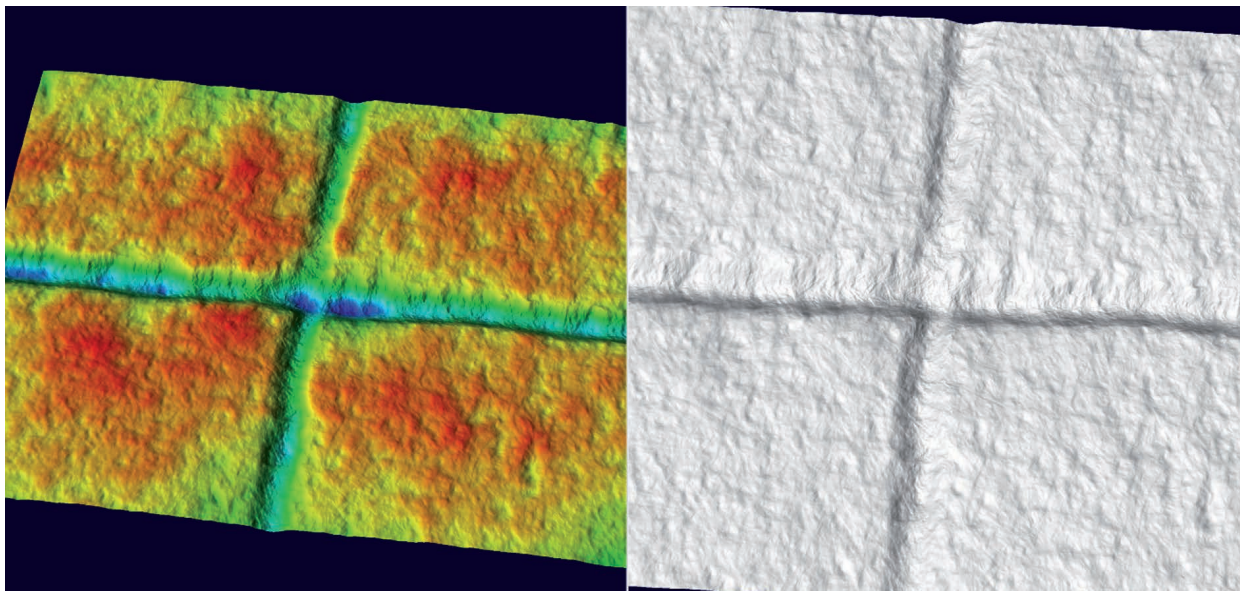


Fig. 3. Images of intersection taken using the 3D modeling option on the VSC 8000.

2.5. Spectroscopic analysis

Spectroscopic analysis involves the generation and interpretation of spectra resulting from the interaction between radiation and the object being examined. Among the many spectroscopic techniques are those that allow researchers to compare spectra from very specific areas of the sample.

In 2011, Vaid et al. [35] proposed obtaining the spectra of radiation reflected from the areas covered by lines applied with clean writing materials and comparing them with spectroscopic signals collected within intersections. The authors used a VSC 2000 HR spectral comparator. According to the above assumptions, the signals measured in the intersections should correspond to the material present in their upper layer, i.e., the layer that was applied second. The authors achieved positive results in the intersection assessments performed using all the analysed types of writing tools, excluding those in which at least one line was created with a gel pen. Furthermore, the method was ineffective in the case of homogenous intersections and in situations where the writing materials had mixed together within the intersections. A year later, two studies were published that addressed the results obtained using similar techniques. In the first study, Kaur et al. [36] investigated the intersections created with the use of prints and traces left by a traditional ballpoint pen, gel pen or a fountain pen. The authors observed that the results were incorrect, due to an uneven coverage of paper fibres with the writing materials. In contrast to previous researchers, Kaur et al. reported

that their attempts to use absorption spectra in order to determine the sequence of intersections were unsuccessful, and they recommended against using this technique. In a second study, Gal et al. [37] performed a chemical analysis using Fourier transform infrared attenuated total reflectance (FT-IR-ATR), which is a technique in which IR light falls at a small angle onto the surface of a material with a higher refractive index than the medium through which it passes; for example, a crystal. As a result, part of the light is reflected, while another part is absorbed by the sample. Next, changes in the absorbance are analysed with an FTIR spectroscope. This method does not require the samples to be prepared by a specialist. On the other hand, its disadvantage is that it cannot differentiate between the spectral bands obtained from a fountain pen ink at its intersection with the printer toner, because IR radiation penetrates deeper than the thickness of the ink. In 2016, Li [38] investigated the same topic and proposed using a different device; namely, a microspectrophotometer, focusing on the intersections of lines created with various tools, printing techniques and stamp impressions. The author established three criteria that had to be met before attempting an assessment with this technique: the spectrum obtained of the stamp ink must be different from the spectrum obtained from the paper and the writing or printing material; the lines should be continuous at the intersections; and the spectrum of the material occupying the top layer should be obtainable without distortions. Also worth mentioning is the article by Martins et al. [39], in which the researchers proposed using a VSC

6000 spectral comparator to collect reflection spectra. Although the authors observed many incorrect measurements of the sequences of intersecting lines, they did not rule out the significance of this method. In 2021, Mathayan et al. [40] analysed the depth-based distribution of chemical elements in writing materials applied with various pens as well as inkjet and laser printers. One of the techniques they used, the Rutherford backscattering spectrometry (RBS), involves the absorption of the energy of ions that are reflected from atoms in the sample at an angle similar to the angle of incidence. Another technique, called particle-induced X-ray emission (PIXE), allows for an analysis of the chemical composition of samples with X-rays created by bombarding a substance with a beam of particles, usually protons or ions. The obtained results helped to determine the sequence of graphical elements applied with two different laser printers and some ballpoint pen inks. Nonetheless, the effectiveness of the results depended on the composition of each material, especially if it contained heavy elements with a sufficiently high concentration. In such cases, the authors were also able to reveal smudged marks and marks modified with a writing material of a different composition. However, the analysis of graphical lines applied with a water-based writing tool (whose main characteristic is penetrating paper) or these containing very low concentrations of heavy elements is challenging.

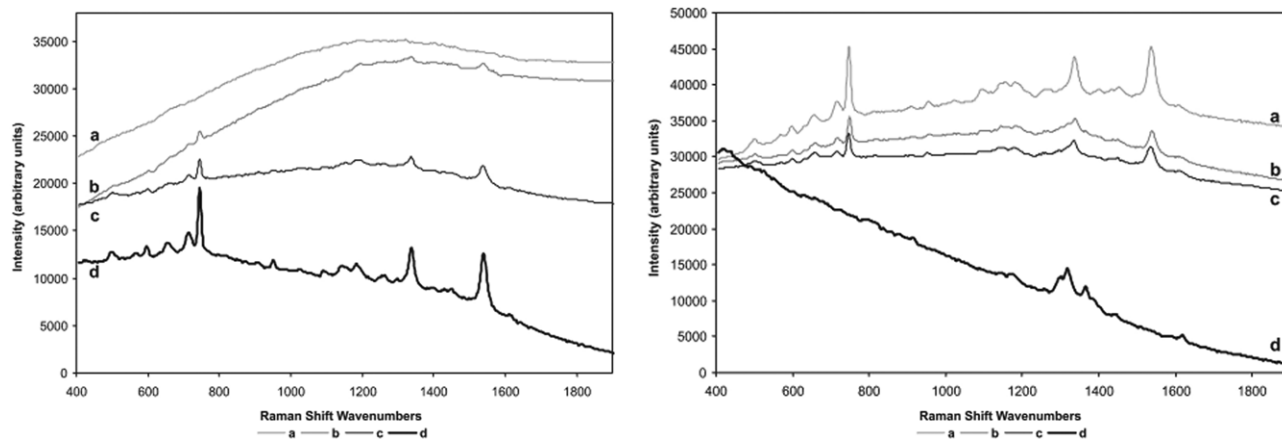
2.5.1. Raman spectroscopy

Among the spectroscopic methods worth mentioning is Raman spectroscopy. It involves measuring the radiation of inelastic photon scattering. Changes in the wavelength, i.e., the Raman shift, result from interactions between radiation and the vibrating bonds in the molecules of a sample. They may provide information about the molecular structure, chemical composition and physical states of a material. Raman spectroscopy is non-destructive, provided that a laser of an appropriate power is used.

The method was first proposed for the assessment of the intersections of graphical elements by Claybourn and Ansell in 2000 [41], who suggested using a low-power laser with a wavelength of 514 nm in order to avoid damaging the sample. The authors pointed out fluorescence as the main drawback of the method; if fluorescence does occur, it is recommended to use a laser with a wavelength of 782 nm. The methodology proposed by the authors was based on assessing the composition of the material applied on top of an intersection, and it could be used in cases where the two materials forming the intersection had a different

chemical composition. No false positive results were obtained in their assessment. In 2002, Fabiańska and Kunicki [42] conducted a series of assessments using Raman spectroscopy, in order to analyse the intersections between homogenous and heterogenous lines. According to the authors, 'a Raman spectrum obtained from the surface of the intersection should constitute a composite of both spectra with a preponderance of features that are typical for the spectrum of the ink on top' [42]. When the authors analysed 208 intersections in opposite combinations, more positive results were obtained for heterogenous intersections. However, they only amounted to 54.1% of all results, compared to 27.1% in homogenous intersections. Some false positives were also observed, but the authors did not find any regularity in the results (Fig. 4). A subsequent study on Raman spectroscopy was published 10 years later. Raza and Saha [43] compared this method with that of high-performance liquid chromatography (HPLC), stating that the first one was more effective, so they decided to focus on this method in their further research. However, they were unable to determine the sequence with which graphical elements were applied onto a surface in cases of intersections between stamp ink and ballpoint pen ink. In 2014, Braz et al. [44] proposed using Raman spectroscopy in combination with multivariate curve resolution (MCR), a technique of spectroscopic data analysis, highlighting its effectiveness in the identification and quantitative determination of chemical components in the examined samples. Based on mathematical algorithms a spectral 'mix' is divided into individual components; for example, various chemical compounds. This allows for a subsequent identification and quantification of each of these components. Unfortunately, only two participants took part in the blind tests, who incorrectly determined the sequence of graphical elements respectively, 31% and 32% of cases. In 2017, the MCR module was used again to identify Raman spectra. Borba et al. [45] demonstrated that MCR helped to identify crossed-out writing, however, a shortcoming of their research was the lack of analysis of blind samples. Two years later, Brito et al. [46] also used MCR, but only obtained an efficiency of 70%.

Spectroscopic methods, due to their non-destructive character, are useful for distinguishing between two inks with different compositions. However, in the case of intersections of graphical elements, the results are still affected by many different effects, including the mixing of components and distortions resulting from the presence of materials around the examined lines.



Canon inkjet printer ink on Bic Pepsi Blue ballpoint pen ink. a – Raman spectrum of Canon inkjet printer ink; b – spectrum from the surface of the intersection; c – spectrum from the lower layer of the intersection; d – Raman spectrum of Bic Pepsi Blue ballpoint pen ink [42].

Bic Fine Black ballpoint pen ink on Pilot BPS Fine Black ballpoint pen ink. a – Raman spectrum of Bic Fine Black ballpoint pen ink; b – spectrum from the surface of the intersection; c – spectrum from the lower layer of the intersection; d – Raman spectrum of Pilot BPS Fine Black ballpoint pen ink [42].

Fig. 4. Raman spectra of inks obtained from pure graphic lines and from the intersections of the lines [42].

2.6. Assessment of elemental composition

Secondary ion mass spectrometry (SIMS) involves breaking off molecules from the surface of the sample with high-energy ions, which then pass through a mass analyser in order to create a map of the chemical composition of the investigated area. The most popular variant of SIMS is time-of-flight secondary ion mass spectrometry (ToF-SIMS), where heavy ions reach the detector later than light ones. Acceleration divides the ions according to the ratio of the mass and charge, which is the basis for their identification. However, the sample is destroyed in the process, either during the measurement or during the preparation.

The method was employed in document examinations as early as in the 1990s, when it was primarily used to differentiate between writing materials. Only much later, in 2006, He et al. [47] suggested using ToF-SIMS to assess the sequence of graphical elements. The procedure is similar to that of a spectroscopic analysis, but instead of spectra, the method collects information about the elemental composition of all the lines located within intersections and outside them, in order to determine the continuity of one of the lines. However, the authors encountered two problems: mixing of the components of the substances at the intersections and the influence of the paper. In 2014, Lee et al. [48] analysed the sequence of graphical elements created with a toner, ballpoint pen ink or stamp ink. They compared two methods:

FTIR spectroscopy and mass spectrometry. In this case, the latter was found to be more effective. In turn, a study conducted by Goacher et al. and published in 2017 [49] focused on intersections applied with black ballpoint pen inks. The results showed an alarmingly large number of incorrect assessments caused by the diffusion of the writing material into the paper that correlated with the drying time of the ink. A year later, Malloy et al. [50] proposed using MeV-SIMS-ToF, in which molecules are desorbed from a surface using ions with energy at the megaelectronvolt level (previously, kiloelectronvolts were used). The authors of this study reported that the destructive nature of the method and measurement difficulties caused discontinuities in the lines produced by the writing material and by an uneven surface on which the writing material was applied. Another point worth noting is that MeV-SIMS uses a particle accelerator, which leads to additional costs and technical requirements. In subsequent publications from 2019 (Moore et al.) [51] and 2021 (Barac et al.) [52], the authors highlighted problems related to analysing water-based writing materials which, due to their absorption into the surface, can lead to misinterpretations, especially when intersecting with other materials, such as oil-based ones. In the former article, an additional spectroscopic method was presented that employs PIXE. However, the authors were only able to correctly identify the sequence in four out of six intersections.

Despite the immense potential of SIMS in determining the elemental composition of samples, the method is susceptible to the mixing of the writing and printing materials, as with the previous method, and leads to their destruction.

2.7. Other methods

Over the years, many methods not belonging to any of the aforementioned categories have also been presented.

In 1977, Strach [53] proposed that in order to determine the order of applying graphic elements to the document, the narrowing of the second line in the configuration at the intersection should be assessed. According to Strach, the line that is applied first leaves a relief, whereas the second one narrows after leaving the area of the intersection. Unfortunately, this effect was only observed for intersections created with a ballpoint pen. As a result, the sequence was assessed correctly in only 17% of cases. In turn, as early as in 1978, More [54] described the application of a 'foil used to collect latent fingerprints' for the assessment of the sequence of graphical lines. With this method, the foil is used to reflect the intersection surface, thereby primarily capturing the edges of the lines, which are the areas located higher up, without including the interior of the relief. This allows researchers to assess the continuity of the lines and their sequence. In 1979, Waeschle [55] analysed images of samples of intersections using an electron microscope. Substances corresponding to a given writing tool were modelled on a surface and assessed visually, in order to determine which one of them was applied second. In this case, the author obtained positive results and encouraged further research in this area. In 1982, Igoe and Reynolds [56] suggested a method resembling the one presented by Strach, but employing a special paper

called Kromekote. They observed that the method is non-destructive as long as proper care is taken, as only the top layer of a writing material is collected, i.e., part of the material is transferred onto the Kromekote paper. Its effectiveness was evaluated at 80%; while in the remaining 20% of the copied intersections, the sequence could not be unambiguously determined. However, it should be noted that the method is ineffective with respect to lines created with liquid ink and pencils. Three years later, Jasuja et al. [57] proposed a new method involving the assessment of reliefs under oblique illumination. Despite a lack of clear 3D modelling, the method was based on the same principle, i.e., determining the continuity of line impressions. The authors were able to correctly determine the sequence in 90% of cases; however, six cases yielded incorrect results. In 1997, Leung and Leung [58] published an article summarising the current knowledge about the lifting method using Kromekote paper. The authors listed a set of factors that affected the results, such as excessive or insufficient pressure, time of the sample creation, speed of writing, width of the reliefs and differences in relief intensity. They assessed many intersections and concluded that the method was susceptible to human error. In 2013, Lee et al. [59] proposed analysis that was also imprint-based but this time using adhesive tape. They analysed the intersections between stamp impressions and printed text applied with an inkjet printer. Their procedure involved photographing the assessed area and carefully removing the top layer of the intersection using tape. Next, the same area was photographed again, and the obtained images were compared to determine the material that appeared after the top layer was removed, which indicated the presence of a writing material located below. These authors did not provide detailed data on the number of correct results (Fig. 5).

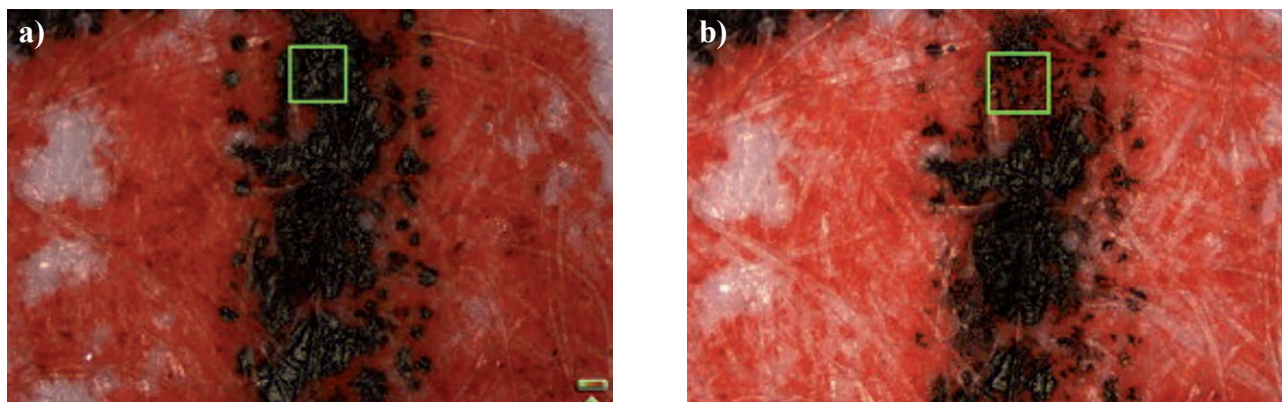


Fig. 5. Color changes of a forged document with printed text over seal impressions; a – before exfoliation with adhesive tapes, b – after exfoliation [59].

The rich variety of approaches that do not belong to any of the aforementioned categories demonstrates the level of engagement, development-oriented mindset and the intent to solve problems related to the assessment of intersections among the scientific community.

2.8. Mixed methods

The reviewed literature also included articles that proposed combining different methods in order to analyse the intersections between graphical elements.

In 1983, Mathyer and Pfister [60] described an application of Kromekote paper and an electron microscope based on previous studies, suggesting that a combination of these two methods would yield complementary results, allowing for the collection of a larger amount of information about the intersections to help determine their sequence. However, only a year later, Koons [61] conducted an analysis aimed at proving or disproving the hypothesis put forward by Mathyer and Pfister. Koons concluded that for some intersections, only one of the two methods is effective, which is why using a combination of both could improve their performance. In the case of samples prepared for a SEM assessment, a small fragment of an intersection should be cut out and coated with a special coating. Omitting this stage considerably worsens the magnifying capacity of the equipment. On the other hand, using Kromekote paper first does not affect the results obtained with electron microscopy. However, because the samples may become flattened to an extent, the author suggested performing more verification tests. The primary disadvantage of both techniques is the inability to image water-based writing materials. Kromekote paper is effective in the case of homogenous lines, with the exception of intersections created with a pencil. In 2017, Li and Ouyang [62] conducted a study using a stereoscopic microscope, but employing different methods from previous studies. They investigated the physical properties, fluorescence and collected top layer of an intersection. Blind tests, performed with five participants, showed a 100% efficiency. In 2011, Wang and Li [63] used a combination of Fourier-transform infrared spectroscopy (FTIR) and scanning electron microscopy with energy dispersive X-ray spectroscopy (SEM-EDX) as analytical and chemical methods with improved accuracy. This allowed them to observe the migration of molecules between a stamp impression and printed text. In order to determine the sequence of graphical elements, they assessed the proportions between the heights of FTIR spectral bands, and applied SEM to map the surface. This allowed the authors to obtain

complete information about the chemical composition of the intersections. In 2016, Kim et al. [64] proposed combining a focus ion beam (FIB) with SEM-EDX in a double-beam machine to analyse the same surface with both methods at the same time, yielding both an image of the surface and complementary information about its elemental composition. Blind tests, performed with 12 experts, correctly determined the sequence with which the graphical elements were applied in 100% of cases.

Every method has its advantages and disadvantages. Therefore, their complementarity is essential to obtain comprehensive information that allows experts to accurately assess the results of measurements.

3. Summary

This review is a new attempt at evaluating the techniques used in forensic document examinations aimed at determining the sequence of graphical elements. Another purpose of the review is to shed light on the development of each of these techniques over the past decades. The preferred techniques among those presented here are the non-destructive ones; however, even a non-destructive technique should be rejected if it yields false positives. The substantial number of studies and the continuous development in this field show how important it is to find the best method. While many of the listed ones in this review have a great deal of potential, however the results are affected not only by the assessment procedure, but often also by the conditions in which the evidence is created or stored. The authors of this review hope it will help readers systematise their knowledge and contribute to their continued development.


References

1. Czaplicki K. Dokumenty tożsamości. Jawność i bezpieczeństwo. Warszawa: Wydawnictwo C. H. Beck; 2016.
2. Koźmiński L. Dokument jako ślad kryminalistyczny: wybrane aspekty. Piła: Wydawnictwo Szkoły Policji; 2010.
3. Bradley J. Sequence of pencil strokes. *J Crim Law Criminol Police Sci.* 1963 Jun;54(2):232-234.
4. Saini K, Kaur R, Sood N. Determining the sequence of intersecting gel pen and laser printed strokes – a comparative study. *Sci Justice.* 2009 Dec;49(4):286-291.
5. Saini K, Kaur R, Sood N. A study for establishing the sequence of superimposed lines: Inkjet versus writing instruments. *Forensic Sci Int.* 2009 Dec;193(1-3):14-20.

6. Wang S, Lu C, Wang G. Examination of the sequence between laser printing and rollerball pen writing without an intersecting stroke. *J Forensic Sci.* 2015 Nov;60(6):1594-600.
7. Wang S. Research on the sequence of laser printing and fountain pen writing without a crossing line. *Aust J Forensic Sci.* 2015 Jun;48:1-13.
8. Lunakova M. Sequence determination in cases of non-intersecting electrophotographic print and handwritten entries. *Journal of the American Society of Questioned Document Examiners.* 2016;19(2):3-14.
9. Tajik Esmaeili A, Ataefard M, Safi M. Recognition of sequence of print and ink strokes: investigation the effect of handwriting pressure, hue of ink, printer and paper type. *Prog Color Color Coat.* 2019 Nov 1;12(4):251-261.
10. Meneghetti M, Mancini L, Caligiore G, Zampa F. Determining line-crossing sequences between laser printing and black ink using digital microscopy: The influence of writing tool and toner. *Forensic Sci Int.* 2024 Jul;360.
11. Radley R. Determination of sequence of writing impressions and ball pen inkstrokes using the ESDA technique. *J Forensic Sci Soc.* 1993 Apr;33(2):69-72.
12. Radley R. Determination of sequence of intersecting ESDA impressions and porous tip, fibre tip and rollerball pen inks. *Sci Justice.* 1995 Jan;35(4):267-272.
13. Radley R, Lindblom B. Impressions/ink intersection sequencing – a comprehensive overview. *Journal of the American Society of Questioned Document Examiners.* 2011;14:3-13.
14. Giles A. Extending ESDA's capability: the determination of the order of writing and impressions using the technique of electrostatic detection. *Forensic Sci Int.* 1993 May;59(2):163-168.
15. Daéid N, Whitehead L, Allen M. Examining the effects of paper type, pen type, writing pressure and angle of intersection on white and dark dominance in ESDA impressions of sequenced strokes – an application of the likelihood ratio. *Forensic Sci Int.* 2008 Oct 25;181(1-3):32-5.
16. Radley R. Determination of sequence of ball point pen writing utilising infrared luminescence techniques. *J Forensic Sci Soc.* 1982 Oct;22(4):373-5.
17. Rosengarten A, Zhidkov T, Hadassah T. Determining the sequence of crossing lines using fluorescence microscopy. 9th International Conference on NDT of Art: Israel; 2008. Available from: <https://www.ndt.net/article/art2008/papers/211Rosengarten.pdf>
18. Li B, Ouyang G. An examination of the sequence of intersecting seal and laser printing toner line. *J Forensic Sci.* 2017 Mar;62(2):476-482. doi: 10.1111/1556-4029.13283. Epub 2016 Nov 17.
19. Williamson R, Djidrovaska D, Ledic A, Brzica S, Vesna A, Hofer R, et al. Characterization and identification of luminescent components in inks using various analytical techniques for the study of crossed-line intersections. *Forensic Chem.* 2017 Jan;3:28-35.
20. Li B, Ouyang G, Zhao P. Preliminary study on determining the sequence of intersecting lines by fluorescence technique. *J Forensic Sci.* 2018 Mar;63(2):577-582. doi: 10.1111/1556-4029.13572. Epub 2017 Jun 6.
21. Wu X, Fang F, Li B. Determination of the sequence of intersecting lines between toners and seals by laser fluorescence microscope. *J Forensic Sci.* 2019 Nov;64(6):1761-1768. doi: 10.1111/1556-4029.14097. Epub 2019 May.
22. Kasas S, Khanmy-Vital A, Dietler G. Examination of line crossings by atomic force microscopy. *Forensic Sci Int.* 2001 Jul 15;119(3):290-8.
23. Khanmy-Vital A, Kasas S, Dietler G. The use of atomic force microscopy to determine the sequence of crossed lines. *Problems of Forensic Sciences.* 2001;46:401-412.
24. Berx V, De Kinder J. A 3-D view on the crossing lines problem in document investigation. *Proc SPIE-Int Soc Opt Eng.* 2002 Jan;4709:102-110.
25. Spagnolo G, Simonetti C, Cozzella L. Superposed strokes analysis by conoscopic holography as an aid for a handwriting expert. *J Opt A-Pure Appl Opt.* 2004 Aug;6(9):869-874.
26. Spagnolo G. Potentiality of 3D laser profilometry to determine the sequence of homogenous crossing lines on questioned documents. *Forensic Sci Int.* 2006 Dec 20;164(2-3):102-9. doi: 10.1016/j.forsciint.2005.12.004.
27. Watson G, Watson J. Potential applications of scanning probe microscopy in forensic science. *J Phys Conf Ser.* 2007 Apr;61:1251-1255.
28. Kaur R, Saini K, Sood N. Sequencing the intersections of printed strokes with writing instrument strokes using DocuCentre expert (PIA 6000-EDF). *Sci Justice.* 2013 Jun;53(2):206-211.
29. Mann M, Shukla S, Pathak S. Determination of the sequence of strokes made from the same color and type of the ink. *J Punjab Acad Forensic Med Toxicol.* 2018 Jul;18(1):50-53.
30. Mann M, Pathak S, Shukla S. Three-dimensional detection of sequence of strokes using confocal microscope. *Egypt J Forensic Sci.* 2019 Mar;9(1):12-20.
31. Saini K, Rathore R, Kaur R, Sharma T, Kaur S. Establishing sequence of inkjet printer, laser printer and writing ink strokes using scanning electron microscopy (SEM). *AJFSFM.* 2019 Dec;1(10):1367-1372.
32. Zhang N, Jiang P, Wang W, Wang C, Xie L, Li Z, Huang W, et al. Initial study for the determination of the sequence of intersecting lines between gel pens and seals by optical coherence tomography. *J Forensic Sci.* 2020 Nov;65(6):2071-2079.
33. Gould J, Clement S, Crouch B, King RSP. Evaluation of photometric stereo and elastomeric sensor imaging for the non-destructive 3D analysis of questioned documents – a pilot study. *Sci Justice.* 2023 Jul;63(4):456-467.
34. Ascioglu, F, Gelir A, Yilmaz A, Kinder J, Kadi O, Ozdemir O, et al. 3D scanning based image processing technique for measuring the sequence of intersecting lines. *Int J Doc Anal Recog.* 2024;1-12.

35. Vaid B, Rana R, Dhawan C. Determination of sequence of strokes through reflection spectra. *Problems of Forensic Sciences*. 2011 Jan;87:193-203.
36. Kaur R, Saini K, Sood N. Application of video spectral comparator (absorption spectra) for establishing the chronological order of intersecting printed strokes and writing pen strokes. *Sci Justice*. 2013 Jun;53(2):212-9.
37. Gal T, Sandor J, Karoly A. Determining the sequence of crossed lines by FT-IR-ATR-microscopy. *Global Forensic Science Today*. 2012. Available from: https://www.researchgate.net/profile/Agnes-Karoly/publication/275948162_Determining_the_sequence_of_crossed_lines_by_FT-IR-ATR-Microscopy/links/554a04840cf26eacd6923f23/Determining-the-sequence-of-crossed-lines-by-FT-IR-ATR-Microscopy.pdf
38. Li B. An examination of the sequence of intersecting lines using microspectrophotometry. *J Forensic Sci*. 2016 May;61(3):809-814.
39. Martins A, Dourado C, Talhavini M, Braz A, Batista Braga J. Determination of chronological order of crossed lines of ballpoint pens by hyperspectral image in the visible region and multivariate analysis. *Forensic Sci Int*. 2019 Mar;296:91-100.
40. Mathayan V, Sortica M, Primetzhofer D. Determining the chronological sequence of inks deposited with different writing and printing tools using ion beam analysis. *J Forensic Sci*. 2021 Mar;66:1-9.
41. Claybourn M, Ansell M. Using Raman spectroscopy to solve crime: inks, questioned documents and fraud. *Sci Justice*. 2000;40(4):261-271.
42. Fabiańska E, Kunicki M. Raman spectroscopy as a new technique for determining the sequence of intersecting lines. *Problems of Forensic Sciences*. 2003;53:60-73.
43. Raza A, Saha B. Application of Raman spectroscopy in forensic investigation of questioned documents involving stamp inks. *Sci Justice*. 2013 Sep;53(3):332-338.
44. Braz A, López-López M, García-Ruiz C. Raman imaging for determining the sequence of blue pen ink crossings. *Forensic Sci Int*. 2015 Apr;249:92-100. doi:10.1016/j.forsciint.2015.01.023. Epub 2015 Jan 31.
45. Borba F, Jawhari T, Honorato R, Juan A. Confocal Raman imaging and chemometrics applied to solve forensic document examination involving crossed lines and obliteration cases by a depth profiling study. *Analyst*. 2017 Mar;142(7):1106-1118.
46. Rodrigues E, Brito L, Chaves A, Braz A, Pimentel M. Raman hyperspectral imaging and a novel approach for objective determination of the order of crossing ink lines. *Spectrochim Acta A Mol Biomol Spectrosc*. 2019 Dec 5;223:117287.
47. He A, Karpuzov D, Xu S. Ink identification by time-of-flight secondary ion mass spectroscopy. *Surf Interface Anal*. 2006 Mar;38:854-858.
48. Lee J, Kim S, Cho Y, Nam Y, Lee K, Lee Y. Characterization and sequence determination of pen inks, red sealing inks, and laser toners by TOF-SIMS and ATR FTIR. *Surf Interface Anal*. 2014 Apr;46:317-321.
49. Goacher R, DiFonzo L, Lesko K. Challenges determining the correct deposition order of different intersecting black inks by time-of-flight secondary ion mass spectrometry. *Anal Chem*. 2017 Jan;89(1):759-766.
50. Malloy M, Radović I, Siketić Z, Jakšić M. Determination of deposition order of blue ballpoint pen lines by MeV secondary ion mass spectrometry. *Forensic Chem*. 2018 Mar;7:75-80.
51. Moore K, Barac M, Brajković M, Bailey M, Siketić Z, Bogdanović Radović I. Determination of deposition order of toners, inkjet inks, and blue ballpoint pen combining MeV-secondary ion mass spectrometry and particle induced X-ray emission. *Anal Chem*. 2019 Oct;91(20):12997-13005.
52. Barac M, Filko A, Siketić Z, Brajković M, Ledić A, Bogdanović Radović I. Comparison of optical techniques and MeV SIMS in determining deposition order between optically distinguishable and indistinguishable inks from different writing tools. *Forensic Sci Int*. 2022 Feb;331:111136.
53. Strach S. Establishing the sequence of intersecting ballpoint pen strokes. *Forensic Sci*. 1978;11(1):67-74.
54. Moore D. Determining the sequence of ball-point pen writings – a new method? *J Forensic Sci*. 1978 Jan;23(1):142-148.
55. Waeschle P. Examination of line crossings by scanning electron microscopy. *J Forensic Sci*. 1979 Jul;24(3):569-578.
56. Igoe T, Reynolds L. A lifting process for determining the writing sequence of two intersecting ball-point pen strokes. *Forensic Sci Int*. 1982;20(2):201-205.
57. Jasuja O, Singla A, Chattopadhyay PK. A simple method for determining the sequence of intersecting ball pen lines. *J Forensic Sci Soc*. 1987 Jul;27(4):227-230.
58. Leung S, Leung Y. A systematic study of the lifting technique for determining the writing sequence of intersecting ball pen strokes. *Sci Justice*. 1997 Jul;37(3):197-206.
59. Lee K, Lee J, Kong S, Kim B. Sequence discrimination of heterogeneous crossing of seal impression and ink-printed text using adhesive tapes. *Forensic Sci Int*. 2014 Jan;234:120-125.
60. Mathyer J, Pfister R. The determination of sequence of crossing strokes by the “Kromekote” paper lifting process and by the scanning electron microscopic method. *Forensic Sci Int*. 1984 Feb;24(2):113-124.
61. Koons R. Sequencing of intersecting lines by combined lifting process and scanning electron microscopy. *Forensic Sci Int*. 1985 Apr;27(4):261-276.
62. Li B, Ouyang G. An examination of the sequence of intersecting seal and laser printing toner line. *J Forensic Sci*. 2017 Mar;62(2):476-482.

63. Wang Y, Li B. Determination of the sequence of intersecting lines from laser toner and seal ink by Fourier transform infrared microspectroscopy and scanning electron microscope / energy dispersive X-ray mapping. *Sci Justice*. 2012 Jun;52(2):112-118.
64. Kim J, Kim M, An J, Kim Y. Determination of the sequence of intersecting lines using focused ion beam/scanning electron microscope. *J Forensic Sci*. 2016 May;61(3):803-808.

ORCIDMarcin Kunicki  0000-0002-0604-2514Zuzanna Bura  0009-0002-9503-3659

Corresponding author

Zuzanna Bura
Instytut Ekspertyz Sądowych
ul. Westerplatte 9
PL 31-033 Kraków
e-mail: zbura@ies.gov.pl

PRZEGLĄD ORAZ TRENDY W BADANIACH NAD KOLEJNOŚCIĄ NANOSZENIA ELEMENTÓW GRAFICZNYCH NA DOKUMENT

1. Wstęp

Pomimo szybkiego postępu cyfryzacji społeczeństwa kryminalistyczne badania dokumentów w ramach nauk sądowych nadal odgrywają istotną rolę, przede wszystkim ze względu na wszechobecność przedmiotu badań w naszym codziennym otoczeniu – począwszy od wexsli i pokwitowań poprzez różnego rodzaju umowy i skończone na testamentach. Pozostające w powszechnym użytku dokumenty na przestrzeni stuleci zmieniały swoją formę, jednak ich funkcja informacyjna wciąż pozostawała taka sama. W ujęciu prawnym definiowane są jako „każdy przedmiot lub inny zapisany nośnik informacji, z którym jest związane określone prawo, albo który ze względu na zawartą w nim treść stanowi dowód prawa, stosunku prawnego lub okoliczności mającej znaczenie prawne” (art. 115 § 14 k.k.) lub „nośnik informacji umożliwiający zapoznanie się z jej treścią” (art. 77 § 3 k.c.). Wiąże się to z jego tradycyjnym rozumieniem, ponieważ z łaciny słowo *documentum* od *docere* oznacza „nauczać” oraz *mens* oznacza wyrażenie i przekaz woli przez konkretną osobę, wywołujące określone sytuacje faktyczne, będące skutkiem konkretnych czynności [1]. Tymczasem definicja dokumentu w badaniach sądowych przybiera nieco odmienną formę, a mianowicie: „przedmiot posiadający w różnej formie mającą znaczenie prawne. I tylko życie i rozwój cywilizacji ogranicza, a właściwie rozszerza, realne formy dokumentu” [2]. Ze względu na fakt nieograniczania przytoczonych wyżej definicji słowa „dokument” do namacalnych, papierowych egzemplarzy przed tą dziedziną kryminalistyki otwierają się możliwości dalszego rozwoju, wynikające z cyfryzacji i postępu społeczeństwa.

Jako jedną z poddziedzin badań dokumentów wyróżnić możemy ustalenie kwestii kolejności kreślenia elementów graficznych na powierzchni papieru. Badania w tym zakresie służą do ujawniania oszustw związanych z nanoszeniem wtórnych zapisów do już istniejących, a w efekcie prowadzą np. do określenia, czy podpis został nakreślony *in blanco* bądź ustalenia pierwotnej treści dokumentu. Brak uniwersalnej metodologii w przypadku tego rodzaju analiz wciąż pozostaje wyzwaniem. Naukowcy zajmujący się tym zagadnieniem od lat prowadzą żywe polemiki oraz proponują nowe rozwiązania badawcze. W ciągu ostatnich lat opublikowano wiele prac, w których omówiono liczne techniki. Niniejszy artykuł ma na celu usystematyzowanie tej wiedzy i wyróżnienie najważniejszych strategii postępowania,

a także zapewnienie kompleksowego przeglądu metodologii opracowanych przez ekspertów z dziedziny badań dokumentów.

W dalszej części pracy przyjęto następujący podział:

- ze względu na wykorzystywaną aparaturę:
 - mikroskop,
 - system obrazowania elektrostatycznego ESDA[®],
- ze względu na rodzaje zastosowanych technik:
 - badania optyczne z wykorzystaniem zjawiska luminescencji,
 - modelowanie 3D,
 - badania spektroskopowe
 - spektroskopia Ramana,
 - badania składu pierwiastkowego

oraz inne metody, które nie wpisują się w żadną z powyższych kategorii.

Mimo że niektóre z opisywanych w literaturze technik badawczych wykazują wysoki potencjał w prawidłowym określaniu kolejności naniesienia elementów graficznych na dokument, zdarzają się przypadki, gdy ich zastosowanie wiąże się z nieodwracalnym uszkodzeniem lub zniszczeniem dokumentów bądź co gorsza prowadzą one do uzyskania wyników fałszywie pozytywnych.

2. Metody badań skrzyżowań linii graficznych

2.1. Mikroskopia

Metody mikroskopowe są najstarszymi, a zarazem najbardziej efektywnymi i najczęściej wykorzystywanymi technikami w badaniach skrzyżowań linii graficznych. Analizę materiału przeprowadza się z wykorzystaniem mikroskopu optycznego lub cyfrowego. W pierwszym z nich – znanym od 1590 r. – obraz zbierany jest przez soczewki, a oceny dokonuje bezpośrednio operator. Natomiast mikroskopia cyfrowa opracowana została dopiero 400 lat później, w roku 1986. Obserwowany przy jej pomocy obraz przetwarzany jest przez kamerę i przekazywany przez monitor, dzięki czemu możliwe jest osiągnięcie jego wysokiej rozdzielczości.

Już w 1963 r. Bradley [3], analizując skrzyżowania naniesione ołówkami, wykorzystując mikroskop stereoskopowy, prowadził obserwacje przy różnych kątach oświetlenia w powiększeniu 30x. Ocenie podlegała przede wszystkim ciągłość depozytów pozostawianych przez grafit, które w odpowiednim oświetleniu wykazywały specyficzny połysk. Ponadto o ile linie graficzne

były nakreślone przy silnym nacisku ołówka, możliwe było również przeanalizowanie równoległych żłobków i wgłębień powstałych przez interakcję narzędzia pisarskiego z podłożem. Autor zalecił, by podczas badań stosowano różne techniki i uwzględniano takie czynniki, jak: kąt oświetlenia, rodzaj wykorzystywanej aparatury czy stopień powiększenia. Dopiero w 2009 r. Saini i in. [4] zaproponowali łączne wykorzystanie mikroskopu cyfrowego i stereoskopowego. Badali oni skrzyżowania linii graficznych wykonanych za pomocą długopisów żelowych i drukarek laserowych, w efekcie czego zaobserwowano świecenie się obszaru w miejscu, w którym materiał pisarski został naniesiony na nadruk. W tym samym roku wydali oni także drugą publikację [5], w której tym razem opisane zostały skrzyżowania linii pisarskich z nadrukami wykonanymi drukarką atramentową zamiast laserowej. Próby ślepe wykazały wysoką skuteczność zastosowanego mikroskopu stereoskopowego, a sami autorzy skonkludowali, że najtrafniej oceniane są skrzyżowania nakreślone różnokolorowymi materiałami pisarskimi. Trzeba jednak podkreślić, że nie uzyskali oni analogicznych wyników przy wykorzystaniu mikroskopu cyfrowego. W 2015 r. Wang i in. [6], a następnie sam Wang [7], wydali publikacje będące kontynuacjami wcześniej opisanych badań. Brali oni pod uwagę zmienne takie jak pokrycie pastą drobin tonera rozkładających się na całym dokumencie w procesie druku oraz zmianę obrazu linii pisarskiej pod wpływem procesów termicznych wynikających z przejścia wcześniej zapisanej kartki przez urządzenie drukujące. Zaprezentowane wyniki okazały się niejednoznaczne, bowiem do wykonania próbek wykorzystano długopis piszący czarną pastą, która słabo odznaczała się na nadrukach. Rok później Lunakova [8] w swym artykule przedstawiła metodykę badań kolejności naniesienia elementów graficznych na dokument za pomocą mikroskopu optycznego i aparatu mikro-zoom także dla przypadków, w których nie występują bezpośrednie skrzyżowania linii graficznej z nadrukami, proponując ewaluację dwóch cech. Pierwszą z nich jest statystyczna ocena przypadkowego rozproszenia drobin tonera w obszarach poza nadrukiem przy linii graficznej zapisu i wokół niej. Poprzez porównanie ilościowe rozkładu drobin we wskazanych kategoriach miejsc na dokumencie eksperci mogą ustalić, czy wpis został wykonany przed czy po druku. Druga – to ocena bezpośrednia, opierająca się na obserwacji cząstek tonera i atramentu na powierzchni papieru za pomocą mikroskopu o dużym powiększeniu. Biegli analizują rozmiar i położenie cząstek tonera oraz ich interakcję z odręcznymi zapisami. Metoda ta wymaga doświadczenia i drogiego sprzętu mikroskopowego, ale może być bardzo skuteczna w ustalaniu sekwencji wpisów. W 2019 r. Esmaeili i in. [9] opisali wpływ różnych czynników na badania mikroskopowe skrzyżowań, takich jak np. barwa i odcień materiału pisarskiego, nacisk na podłoże, rodzaj

techniki druku oraz papieru. Podczas analizy stwierdzili między innymi, że przy większym nacisku narzędzia pisarskiego rośnie prawdopodobieństwo prawidłowej oceny kolejności kreślenia linii graficznych. Najnowszy artykuł autorstwa Meneghettiego i in. koncentruje się na wykorzystaniu mikroskopu cyfrowego Hirox RH, który umożliwia powiększenie do 700x. Autorzy w swoich badaniach przeprowadzili ocenę skrzyżowań elementów graficznych wykonanych za pomocą drukarek laserowych z liniami nakreślonymi różnymi narzędziami pisarskimi. Analizie poddali cechy takie jak pęknięcia tonera, przerwania ciągłości linii graficznych zapisów znajdujące się tuż za skrzyżowaniem oraz zmianę barwy powierzchni tonera pod wpływem materiału pisarskiego (tzw. *bronzing effect*). Według autorów to ta ostatnia cecha odgrywa kluczową rolę w prawidłowym określaniu kolejności nanoszenia elementów graficznych. Największe wyzwanie dla badaczy stanowiła analiza skrzyżowań nakreślonych z użyciem cienkopisów. W ramach badań stworzono również schemat blokowy, mający na celu wsparcie biegłych z zakresu badań dokumentów w analizie przecinających się linii [10].

Metody mikroskopowe wciąż należą do najpopularniejszych, najczęściej używanych i wykazujących przy tym wysoką skuteczność. Ocena obrazu musi jednak być przeprowadzona przez wyszkolonych ekspertów.

2.2. System obrazowania elektrostatycznego ESDA®

Aparat elektrostatyczny ESDA® służy do ujawniania bezbarwnych przetłoczeń zapisów (reliefów) na papierze. Jego działanie polega na naniesieniu ładunków na cienką folię przylegającą do dokumentu, w efekcie czego pojawiają się różnice potencjałów między powierzchnią a zagłębieniami, które następnie obrazuje się poprzez wykorzystanie gromadzącego się w nich czarnego tonera. Urządzenie to służy także do określania kolejności linii wchodzących w skład przecięć pomiędzy rękopisem naniesionym na dokument za pomocą narzędzia pisarskiego a bezbarwnymi reliefami.

Prym w tych badaniach wiedzie Radley, autor wielu publikacji, wydanych między innymi w latach 1993 i 1995, oraz we współpracy z Lindblomem w 2011 r. [11, 12, 13]. Opierał się on na założeniu, że reliefy są obrazowane przez aparat ESDA® na czarno, a zapisy nakreślane materiałem pisarskim na białą, zaś ciągłość któregoś z tych dwóch elementów wskazuje na jego nakreślenie w drugiej kolejności. Zauważył, że wpływ na wykrywalność reliefów przez aparat ESDA® mają wilgotność oraz wygięcia papieru. Przeanalizował w swych pracach liczne próbki, jednak skuteczność tej metody okazała się niezadowalająca, w szczególności gdy materiał pisarski został naniesiony w drugiej kolejności. Liczba fałszywie pozytywnych wyników otrzymanych podczas opisanych badań nakazuje niezwykłą ostrożność

przy ocenie skrzyżowań zobrazowanych za pomocą tej techniki. W publikacjach tych wykazano szereg czynników mogących wpłynąć na błędną ocenę kolejności, takich jak: nacisk, czas schnięcia materiału kryjącego, rodzaj narzędzia pisarskiego, struktura papieru i podłoże, na którym się znajduje. Ponadto sposób przechowywania dokumentu w aktach spraw sądowych może prowadzić do spłaszczenia badanych reliefów. Wnioski te potwierdził Giles [14], dodając, że w przypadku gdy zapisy tekstowe wykonane są na reliefach, metoda ta wykazuje większą efektywność, a wyniki fałszywie pozytywne są rzadkością, natomiast w odwrotnej sytuacji określenie kolejności nie jest tak proste, bowiem zarówno czarne, jak i białe linie obrazowane za pomocą aparatu ESDA[®], wykazują podobną intensywność. Ponownie o technice tej można było przeczytać w 2008 r. Daéid i in. [15] jako czynnik obiektywnej oceny zaproponowali wykorzystanie ilorazu wiarygodności (*likelihood ratio*), czyli stosunku prawdopodobieństwa zaobserwowania wyniku przy jednej hipotezie do prawdopodobieństwa przy hipotezie alternatywnej. Iloraz wiarygodności porównuje prawdopodobieństwo zaobserwowania danego dowodu przy założeniu, że pierwsza hipoteza jest prawdziwa, z prawdopodobieństwem zaobserwowania tego dowodu, jeśli prawdziwa jest hipoteza alternatywna. Na wyniki badań wpływ miał rodzaj narzędzia pisarskiego i papieru. Dominację bieli w śladach ESDA[®] autorzy uznali za bardziej wiarygodny predyktor sekwencji skrzyżowań.

Podsumowując, omawiana metoda skupia się w głównej mierze na ocenie skrzyżowań niewidocznych przetłoczeń z tymi naniesionymi pastą długopisową, co znacznie ogranicza przedmiot badania kolejności krzyżujących się linii graficznych.

2.3. Badania optyczne z wykorzystaniem zjawiska luminescencji

Zjawisko to polega na wzbudzeniu elektronów poprzez pochłonięcie promieniowania elektromagnetycznego przez cząsteczkę, wywołując ich przejście na wyższą powłokę, tym samym wprowadzając je w stan wzbudzony. Wracając na pierwotne miejsce, elektrony emitują energię niższą niż wzbudzenia. Zmiana ta nazwana jest przesunięciem Stokesa.

Wykorzystanie tego zjawiska do określenia kolejności nanoszenia elementów graficznych na dokument już w 1982 r. zaproponował Radley [16]. Metoda opierała się na założeniu, że przecinające się materiały reagują inaczej przy oświetleniu wiązką wzbudzającą, przy czym jedna z linii nie może wykazywać w świetle podczerwonym luminescencji. Ciągłość linii nieemitującej światła w punkcie przecięcia świadczyć ma o nakreśleniu jej w drugiej kolejności. Niemniej jednak według autora brak takiego efektu nie oznacza sytuacji odwrotnej. Ponadto wpływ na ocenę skrzyżowania mają między

innymi rozkład materiału pisarskiego na podłożu oraz wykorzystana podczas kreślenia siła nacisku. Otrzymany efekt obserwowany jest w skrzyżowaniach, w których linie graficzne przecinają się pod kątem 65° lub 90°. Ponownie o metodzie tej można było przeczytać dopiero w XXI w. Rosengarten i in. [17] w swojej pracy badali przede wszystkim skrzyżowania niefluorescencyjnej pasty długopisowej z nadrukami wykonanymi za pomocą luminescencyjnego atramentu. Autorzy nie podają skuteczności wykorzystanej metody, lecz podkreślają jej nieniszczący charakter i zauważają jej ograniczenia skupiające się na analizie jedynie skrzyżowań o odmiennej luminescencji. W roku 2016 Li i Ouyang [18] zbadali sto dwanaście skrzyżowań pomiędzy odciskami pieczętek a nadrukami wykonanymi drukarką laserową. W trakcie swoich badań odkryli cechy ułatwiające określenie kolejności naniesienia elementów graficznych, w tym przerwy w nadruku znajdującym się na odcisku pieczętki oraz akumulację czy adhezję jej tuszu na powierzchni tonera. W przypadku gdy fluorescencyjny materiał znajduje się na powierzchni drugiego, jego intensywność nie zmienia się w stosunku do elementów poza obszarem skrzyżowania, natomiast w odwrotnej sytuacji jest ona osłabiona. Badania zakończyły się próbami ślepych, które wykazały precyzyjność zaproponowanych metod w zakresie ustalania kolejności pomiędzy liniami wykonanymi drukiem laserowym i tuszem pozostawionym przez pieczętkę. Przedstawione wyniki sugerują wysoki potencjał przedstawionej techniki, jednak należy przy tym pamiętać o ograniczeniach, o których pisał Williamson i in. [19], związanych z interakcją materiałów pisarskich w obrębie skrzyżowań linii. Powodują one niewidoczną migrację cząsteczek substancji, która prowadzi do luminescencji mieszaniny materiałów pisarskich. Dlatego też autorzy proponują wieloanalityczne podejście, wykorzystujące połączenie metod optycznych z technikami analitycznymi, takimi jak MALDI (*matrix assisted laser desorption and ionization*), DART (*direct analysis in real-time*), LC (*liquid chromatography*) w połączeniu z MS (*mass spectrometry*) oraz TLC (*thin layer-chromatography*), które okazują się przydatne, oferując solidną metodę identyfikacji i izolacji związków luminescencyjnych. Niestety, wadą dodatkowych metod jest konieczność uszkodzenia dokumentu w celu uzyskania próbek badawczych. W 2018 r. Li i Ouyang [20] ponownie prowadzili swoje badania, poszerzając je o kolejne materiały pisarskie oraz tworząc dwieście dwadzieścia skrzyżowań linii heterogenicznych, czyli wykonanych za pomocą różnych narzędzi pisarskich. Wskazali, że kluczowym warunkiem do przeprowadzenia skutecznej oceny jest ciągłość każdej z nich w miejscu ich przecięcia. Tym razem podczas prób ślepych dokonano niejednoznacznych lub błędnych ustaleń dla przypadków, w których wykorzystano odciski pieczętek. Główną ich przyczyną było mieszanie się substancji

o podobnej polaryzacji cząsteczek, które ze względu na podobieństwo ich właściwości fizycznych wykazują także zbliżone właściwości optyczne. Natomiast w artykule Wu i współpracowników [21] z 2019 r. przedstawiono ulepszone podejście do tejże metody, biorąc pod uwagę złożoną „morfologię” tonera i atramentu pieczętki, dlatego zaproponowano wykorzystanie np. możliwości regulacji długości fali wzbudzenia i użycie filtrów fluorescencyjnych. W badaniu skupiono się na poprawie parametrów, a finalnie autorzy wykazali pozytywne wyniki prób ślepych, a mianowicie 100% dokładności przy współczynniku wykrywalności na poziomie 90%.

Pomimo obiecujących wyników uzyskanych przez wyżej wymienionych autorów badania optyczne z wykorzystaniem zjawiska luminescencji wciąż wykazują ograniczenia już na etapie warunków początkowych, a mianowicie fakt, że analizowane materiały powinny wykazywać różnice we fluorescencji. Z tego powodu niemożliwe jest określenie kolejności nanoszenia skrzyżowań homogenicznych, czyli wykonanych takim samym narzędziem lub różnymi materiałami o tej samej barwie. Ponadto osoba oceniająca narażona jest na popełnienie błędu ze względu na występowanie złudzeń optycznych.

2.4. Modelowanie 3D

Ocena trójwymiarowego obrazu powierzchni skupia się przede wszystkim na badaniu reliefów, czyli związanym z naciskiem przetłoczeń powstających przez interakcję narzędzia pisarskiego z podłożem. Istotą analizy jest ustalenie, która z tworzących skrzyżowanie linii wykazuje ciągłość, co wskazuje na jej późniejsze naniesienie na podłoże.

Obrazy otrzymywane są za pomocą różnych urządzeń lub metod, takich jak np. profilometria czy mikroskopia sił atomowych (AFM, *atomic force microscopy*), którą opisano w dwóch publikacjach z 2001 r. Kasas i in. [22, 23] przedstawili jej działanie, które polega na oddziaływaniu próbki z ostrzem (sondą) zamocowaną na końcu wspornika (beleczki). Odształcenie rejestrowane jest za pomocą wiązki lasera, która odbija się od wspornika. Kiedy ten odchyła się, kąt odbicia wiązki lasera ulega modyfikacji, a zmiana ta jest odczytywana na diodzie. Autorzy wykorzystali zjawisko polegające na wzbudzeniu oscylacji wspornika nad próbką i okresowe jego wchodzenie z nią w interakcję. Amplituda oscylacji i jej częstotliwość są uzależnione od końcówki, a jej odległość od próbki jest używana do śledzenia topografii powierzchni. Głównymi wadami mikroskopii sił atomowych są absorpcja materiału pisarskiego przez podłoże oraz ograniczona przestrzeń badawcza, co w efekcie może prowadzić do konieczności wycięcia fragmentu dokumentu. Rok później Berx i Kinder [24], dostrzegając ograniczenia, jakie niesie za sobą modelowanie 3D za pomocą mikroskopii AFM, zaproponowali nową metodę – interferometryczną

profilometrię laserową, która opiera się na wykorzystaniu promieni lasera do analizy powierzchni. Jej zasada działania obejmuje pomiar czasu, jakiego laser potrzebuje na przebycie odległości między źródłem a powierzchnią obiektu. Używane są w niej zjawiska interferencji światła, którego fale spotykające się na powierzchni obiektu nakładają się na siebie. Analiza ta pozwala na dokładne określenie różnic faz światła, co z kolei umożliwia pomiar wysokości punktów na powierzchni. W odróżnieniu od poprzednio opisanej metody nie jest konieczne zmniejszenie rozmiaru próbki, a więc nie ma konieczności uszkodzenia dokumentu. Niestety znaczną niedogodnością jest długi czas gromadzenia danych. W 2004 r. Spagnolo i in. [25] oraz w 2006 r. Spagnolo [26] zajmowali się rozwojem i poszukiwaniem technik obrazowania 3D. Zaproponowali oni metodę *conoscopic holography* w połączeniu ze znaną już wcześniej profilometrią laserową. Pierwsza z nich polega na obrazowaniu z wykorzystaniem hologramów oraz światła monochromatycznego. Metoda ta umożliwia uzyskanie trójwymiarowych obrazów struktur optycznych i powierzchniowych przy użyciu interferencji światła. Autorzy wykazali, że takie połączenie dwóch metod ma nieniszczący charakter, a także umożliwia wyznaczenie kierunku kreślenia. Skuteczność metody uzależniona jest od głębokości reliefu, dlatego też linie graficzne pozostawione przez narzędzia takie jak pióro czy marker rzadziej są obrazowane lub ocena ich skrzyżowań jest utrudniona. Zaledwie rok później Watson i Watson [27] zaproponowali nowe rozwiązanie, tj. mikroskopię skaningową z użyciem sondy (SPM, *scanning probe microscopy*). Jest to grupa technik mikroskopowych, które wykorzystują sondy o bardzo małej skali (na poziomie nanometrów) do analizy powierzchni na poziomie atomowym. Autorzy swoje próbki przygotowali na błyszczącym papierze ze względu na płaską topografię jego powierzchni. Otrzymali pozytywne wyniki określające kolejność nanoszenia materiałów pisarskich, jednakże zwracają uwagę na ograniczenia związane z wielkością obrazowanej powierzchni i czasem zbierania danych przez instrument. Nowość w technice obrazowania 3D zaprezentowali w 2012 r. Kaur i in. [28], używając do badań komparatora Docucenter Expert, który wyposażony jest w moduł umożliwiający skanowanie dwuwymiarowych obrazów w zmiennej osi „z”, a następnie ich nakładanie w celu uzyskania większej głębi, ostrego oraz trójwymiarowego obrazu. Autorzy uznali uzyskane wyniki za niewystarczające do jednoznacznej identyfikacji sekwencji nakładających się linii. Ponadto wskazali kilka problemów, takich jak np. iluzja optyczna, która sprawia, że ciemniejsze linie zawsze wydają się być na wierzchu, czy też rozmycie krawędzi w liniach o podobnych kolorach. W 2018 r. Mann i in. [29, 30] badali linie homogeniczne za pomocą mikroskopu konfokalnego. W urządzeniach tego typu skanowanie odbywa się za pomocą wiązki laserowej zbierającej dane

o intensywności światła odbitego od próbki. Różni się on od klasycznych mikroskopów większą rozdzielczością oraz kontrastem ze względu na odcięcie światła spoza płaszczyzny ogniskowania przy wejściu do detektora. Wnioski z tych badań sugerują, że mikroskop konfokalny jest przydatnym narzędziem do oceny skrzyżowań, osiagającym skuteczność ustalenia kolejności dla pierwszego z badanych długopisów na poziomie 84% przy 4% błędnych wyników i 92% dla drugiego. Rok później ci sami autorzy ponownie przystąpili do badań, wykazując, że tym razem zaledwie 80% próbek dało zadowalające wyniki, pozwalające na określenie kolejności naniesienia przecinających się elementów graficznych. Zauważyli jednak, że zbyt duża ilość nagromadzonego materiału pisarskiego utrudnia ocenę skrzyżowania. W drugim badaniu naukowcy wyeliminowali kategorię „błędnie ocenionych” kolejności. W tym samym roku Saini i in. [31] starali się wykazać potencjał skaningowej mikroskopii elektronowej (SEM, *scanning electron microscopy*) w modelowaniu 3D. Jest to zaawansowana technika mikroskopowa wykorzystująca wiązkę elektronów zamiast światła, co umożliwia uzyskanie znacznie wyższej rozdzielczości obrazu. Wiązka elektronów skierowana na powierzchnię próbki ulega odbiciu, trafiając następnie do detektora, który je zbiera i przekształca w sygnał. W konsekwencji dostarcza ona obrazy powierzchni próbki przy jednoczesnym zniszczeniu fragmentu dokumentu ze względu na małą powierzchnię roboczą detektora. Autorzy zauważają, że zważywszy na różnice w lepkości materiałów, nie można za pomocą SEM określić poprawnej kolejności linii wykonanych za pomocą żelu i pasty długopisowej. W 2020 r. przez Zhanga i współpracowników [32] została zaproponowana nowa technika zwana *optical coherence tomography* (OCT), polegająca na uzyskaniu przekrojowych obrazów struktur bez kontaktu i niszczenia próbki, zbliżona swym charakterem do badań USG, jednakże wykorzystująca wiązki światła z zakresu bliskiej podczerwieni zamiast dźwięku. Autorzy badali skrzyżowania odcisku pieczętka z zapisami, dla których wykonali dwanaście prób ślepych. Zauważyli oni ograniczenie tej metody, jakim jest niska głębokość penetracji materiału, jeśli próbka wykazuje absorpcję światła z zakresu IR. W 2023 r. Gould i in. [33] przeprowadzili badania za pomocą modułu obrazowania 3D w aparacie VSC 8000 HR. Polegały one na wykonaniu zdjęć próbki pod różnym kątem oświetlenia, co powoduje zmiany w jasności obrazu. Autorzy wykorzystywali również ESI (*elastometric sensor imaging*), czyli detektor stworzony z materiałów elastycznych, które mają zdolność do odkształcania się w odpowiedzi na różne bodźce, takie jak np. nacisk. Obie zaproponowane metody są nieniszczące, jednakże ESI przy „mokrym” materiale prowadzi do pozostawienia go na powierzchni swojej membrany, dlatego naukowcy zalecają ostrożność, aby nie doszło do kontaminacji. Podkreślają również komplementarność

obu technik, pozwalającą na wykorzystanie potencjału obrazowania 3D. Najnowszą z metod jest technika, którą opracował w 2024 r. Asicioglu wraz ze swym zespołem [34], wykorzystująca skaner 3D Erin Scan 2X, w którym istnieje możliwość obrotu dokumentu o 360°. Wykonane przez autorów próby ślepe umożliwiły pozytywne rozstrzygnięcie kolejności naniesienia w dwudziestu trzech z dwudziestu ośmiu próbek. W przypadku pozostałych pięciu druga linia została wykonana z zauważalnie mniejszym naciskiem, co wypłynęło na ich błędną ocenę. W związku z tym sugerowane jest, aby przed przystąpieniem do badań dokonać porównawczej oceny głębokości nakładających się na siebie linii.

Obrazowanie 3D zależy silnie od głębokości reliefów, a zatem – od siły nacisku materiału pisarskiego na podłoże, jednakże w przeciwieństwie do poprzednio wymienianych metod skuteczność swoją wykazało ono dla oceny linii homogenicznych.

2.5. Badania spektroskopowe

Zakres badań spektroskopowych obejmuje zagadnienia związane z tworzeniem oraz interpretacją widm, które powstały w wyniku oddziaływań promieniowania na badany obiekt. Wśród szeregu technik są również takie, które umożliwiają porównanie widm ze ściśle określonych obszarów badanej próbki.

W 2011 r. Vaid i in. [35] zaproponowali wykorzystanie metody polegającej na uzyskaniu widm promieniowania odbitego z obszarów linii czystych materiałów pisarskich, a następnie porównaniu ich z sygnałami spektroskopowymi zbieranymi w obrębie skrzyżowania. W tym celu zastosowali komparator spektralny VSC 2000 HR. Zgodnie z założeniami sygnały instrumentalne uzyskane w obrębie przecięcia powinny odpowiadać materiałowi znajdującemu się w jego górnej warstwie, czyli naniesionemu w drugiej kolejności. Autorzy otrzymali pozytywne wyniki oceny skrzyżowań wykonanych za pomocą wszystkich badanych rodzajów narzędzi pisarskich z wyjątkiem tych, w których co najmniej jedna z linii utworzona została przez długopis żelowy. Ponadto odnotowali, że metoda ta nie sprawdza się w przypadku skrzyżowań homogenicznych lub w sytuacji wymieszania się materiałów pisarskich w obrębie skrzyżowania. Rok później powstały dwie publikacje, które omawiały wyniki badań uzyskanych z wykorzystaniem podobnych technik. W pierwszej z nich Kaur i in. [36] przebadali skrzyżowania utworzone zarówno z wykorzystaniem nadruków, jak i śladów pozostawionych przez długopis klasyczny, żelowy lub pióro wieczne. Zauważyli oni, że na skutek występowania niejednorodnego pokrycia włókien papieru materiałem pisarskim wyniki ulegają zafałszowaniu. W przeciwieństwie do poprzedników podkreślili, że próby wykorzystania widm absorpcyjnych do badania kolejności nakreślonych skrzyżowań nie

przyniosły pozytywnych wyników i przestrzegają przed stosowaniem tej techniki. W drugiej natomiast Gal i in. [37] swoje badania przeprowadzili za pomocą spektroskopii osłabionego całkowitego odbicia w podczerwieni (FT-IR-ATR, *Fourier transform infrared attenuated total reflectance*). Jest to technika analizy chemicznej polegająca na tym, że światło podczerwone wpada pod niewielkim kątem na powierzchnię materiału o wyższym współczynniku załamania niż medium, przez które przechodzi na przykład kryształ. W wyniku tego zjawiska dochodzi do częściowego odbicia promieniowania, a część promieniowania zostaje pochłonięta przez próbkę. Zmiany w absorbancji są następnie analizowane przez spektroskop FTIR. W tej metodzie nie ma potrzeby specjalistycznego przygotowywania próbek, jednakże jej wadą okazała się nierozróżnialność pasma widm uzyskanych z atramentu stosowanego w piórze wiecznym w miejscu jego naniesienia na toner drukarki, ponieważ głębokość wnikania promieniowania IR jest większa niż grubość atramentu. W 2016 r. Li [38] podjął temat, proponując wykorzystanie innego urządzenia – mikrospektrofotometru, i koncentrując się na skrzyżowaniach linii wykonanych różnymi narzędziami i technikami druku z odciskami pieczętki. W swej pracy wyznaczył trzy kryteria należne do spełnienia przed przystąpieniem do badań, a mianowicie: uzyskane widmo tuszu pieczętki musi różnić się od tego pochodzącego od papieru lub materiału pisarskiego/drukarskiego, powinna występować ciągłość linii w przecięciu, a także istnieć możliwość uzyskania bez zakłóceń widma materiału znajdującego się najwyżej. Na wzmiankę zasługuje również artykuł Martins i in. [39], w którym zaproponowano wykorzystanie komparatora spektralnego, model VSC 6000, w celu zebrania widm odbicia. Autorzy zanotowali liczne wyniki nieprawidłowej oceny kolejności naniesienia krzyżujących się linii, jednakże mimo to nie wykluczają znaczenia tej metody. W 2021 r. Mathayan i in. [40] przeprowadzili analizę głębokościowego rozkładu pierwiastków chemicznych w elementach graficznych naniesionych za pomocą różnych rodzajów długopisów oraz drukarek atramentowych i laserowych. Jedną z wykorzystanych przez autorów technik, spektroskopia rozproszenia wstecznego Rutherforda (RBS, *Rutherford backscattering spectrometry*), opiera się na pochłonięciu energii jonów, które pod kątem zbliżonym do kąta padania odbijają się od atomów w badanej próbce. Natomiast druga, PIXE (*particle-induced X-ray emission*), to technika analizy składu chemicznego próbek za pomocą promieni rentgenowskich wytworzonych przez bombardowanie substancji wiązką cząstek, najczęściej protonów lub jonów. Przedstawione w artykule otrzymane za jej pomocą wyniki pozwoliły na ustalanie kolejności naniesienia elementów graficznych wykonanych dwoma różnymi drukarkami laserowymi oraz niektórymi pastami długopisowymi. Skuteczność wyników zależała od składu materiału, zwłaszcza jeśli

zawarte były w nim ciężkie pierwiastki o wystarczająco wysokim stężeniu. W takich przypadkach możliwe było również ujawnienie znaków zamazanych lub zmodyfikowanych przez środek pisarski o innym składzie. Jednakże analiza linii graficznych naniesionych materiałem pisarskim na bazie wody (których główną cechą jest wnikanie w papier) lub zawierających bardzo niskie stężenia ciężkich pierwiastków jest utrudniona.

2.5.1. Spektroskopia Ramana

Jedną z metod spektroskopowych, na którą w szczególności warto zwrócić uwagę, jest spektroskopia Ramana. Polega ona na pomiarze promieniowania nieelastycznego rozpraszania fotonów. Zmiany w długości fali, czyli przesunięcie Ramana, są wynikiem oddziaływań między światłem a drgającymi wiązaniami w cząsteczkach w próbce. Mogą one dostarczyć informacji o strukturze molekularnej, składzie chemicznym oraz stanach fizycznych materiału. Jest to metoda nieniszcząca pod warunkiem zastosowania odpowiedniej mocy lasera.

Po raz pierwszy w badaniach skrzyżowań linii elementów graficznych zaproponowali ją Claybourn i Ansell w 2000 r. [41], sugerując wykorzystanie lasera o długości fali 514 nm i niskiej mocy jego oddziaływania, aby uniknąć uszkodzenia próbki. Autorzy zaznaczają, że zjawisko fluorescencji stanowi główny problem tej metody, aczkolwiek w przypadku wystąpienia tego efektu sugerowane jest zastosowanie lasera o długości fali 782 nm. Metodyka zaproponowana przez autorów opierała się na badaniu składu materiału naniesionego na wierzch skrzyżowania i możliwa była do zastosowania w sytuacji, gdy dwa materiały kryjące wykazywały różny skład chemiczny. Opisane badania nie ujawniły fałszywie pozytywnych wyników. W 2002 r. Fabiańska i Kunicki [42] przeprowadzili szereg badań z wykorzystaniem spektroskopii Ramana do analizy skrzyżowań linii homogenicznych oraz heterogenicznych. Ich zdaniem „widmo Ramana z powierzchni skrzyżowania powinno odzwierciedlać sumaryczny obraz obu widm, z przewagą cech charakterystycznych dla widma atramentu znajdującego się na górze” [42]. Przebadali 208 skrzyżowań w przeciwnych kombinacjach. Więcej wyników pozytywnych uzyskali, badając skrzyżowania heterogeniczne, jednakże było ich zaledwie 54,1%, natomiast w przypadku homogenicznych – tylko 27,1%. Wystąpiły również wyniki fałszywie pozytywne, przy czym autorzy nie zauważyli w nich żadnej prawidłowości (Ryc. 4). Dopiero dziesięć lat później Raza i Saha [43] porównali metodę spektroskopii Ramana z wysokosprawną chromatografią cieczową (HPLC, *high-performance liquid chromatography*), stwierdzając przewagę tej pierwszej, dlatego też w dalszej analizie postanowili skupić się właśnie na niej. Jednakże nie byli oni w stanie określić kolejności nanoszenia elementów graficznych na podłożu w przypadku skrzyżowań tuszu pieczętki z pastą długopisową. Braz

i in. [44] w roku 2014 zaproponowali zastosowanie obrazowania przy użyciu spektroskopii Ramana w połączeniu z techniką analizy danych spektroskopowych MCR (*multivariate curve resolution*), wskazując jej skuteczność w identyfikacji i ilościowym określeniu składników chemicznych w badanych próbkach. Za pomocą algorytmów matematycznych „mieszanka” spektralna rozdzielana jest na poszczególne składowe, np. różne związki chemiczne. Dzięki temu możliwe jest zidentyfikowanie i kwantyfikacja każdego z tych składników. Niestety w próbach ślepych wzięło udział tylko dwoje uczestników, przy czym w kolejno 31% oraz 32% przypadków błędnie określili oni kolejność nanoszenia elementów graficznych. W 2017 r. moduł MCR był dalej wykorzystywany przy analizie widm ramanowskich. Borba i in. [45] wykazali, że przy jego pomocy możliwe jest odczytanie zapisów zakreślonych; niedostatkim ich badań był jednak brak analizy prób ślepych. Dwa lata później Brito i in. [46], stosując tę samą metodę w swych badaniach, uzyskali zaledwie 70% skuteczności.

Metody spektroskopowe dzięki swojemu nieniszczącemu charakterowi wykazują przydatność podczas rozróżniania dwóch odmiennych pod względem składu materiałów kryjących, jednakże w przypadku badań skrzyżowań elementów graficznych wciąż wiele efektów wykazuje wpływ na otrzymywane wyniki. Zaliczają się do nich między innymi możliwość mieszania się składników lub zakłócenia wynikające z obecności materiału wokół badanej linii.

2.6. Badanie składu pierwiastkowego

Zasada działania spektroskopii mas jonów wtórnych (SIMS, *secondary ion mass spectrometry*) opiera się na wybiciu cząsteczek z powierzchni próbki za pomocą jonów o wysokiej energii, które następnie przechodzą przez analizator mas, w efekcie czego możemy otrzymać mapę składu chemicznego badanego obszaru. Najbardziej popularną odmianą tej techniki jest spektroskopia mas jonów wtórnych z analizatorem czasu przelotu (ToF-SIMS, *time-of-flight secondary ion mass spectrometry*). Cięższe jony docierają do detektora później aniżeli lżejsze. Przy przyśpieszaniu ulegają rozdzieleniu na podstawie stosunku masy do posiadanego ładunku, co pozwala na ich identyfikację. W wyniku badań w trakcie pomiarów lub na etapie przygotowania próbka zostaje zniszczona.

Metoda ta w badaniach dokumentów wykorzystywana była już w latach 90. ubiegłego wieku, służyła wówczas przede wszystkim do rozróżniania materiałów pisarskich, natomiast dopiero w 2006 r. He i in. [47] zaproponowali wykorzystanie ToF-SIMS do oceny kolejności skrzyżowań elementów graficznych. Zasada jej działania jest zbliżona do analiz spektroskopowych, jednak zamiast widm zbierane są informacje o składzie pierwiastkowym poszczególnych linii skrzyżowań poza

i w obszarze przecięcia. Na tej podstawie ustalana jest ciągłość jednej z nich. Autorzy natknęli się jednak na problem, jakim jest mieszanie się składników substancji w miejscu skrzyżowania oraz wpływ papieru. W 2014 r. Lee i in. [48] analizowali kolejność naniesienia elementów graficznych wykonanych tonerem, pastą długopisową lub tuszem pieczętki. Porównali dwie metody, tj. spektroskopię FTIR i spektroskopię mas, wykazując przewagę tej drugiej. Z kolei badania wykonane przez Goacher i in., opublikowane w artykule z 2017 r. [49], koncentrowały się wokół skrzyżowań wykonanych czarnymi pastami długopisowymi, a wyniki wykazały alarmującą liczbę nieprawidłowych ocen spowodowanych dyfuzją materiału pisarskiego do papieru skorelowaną z czasem schnięcia pasty. Rok później Malloy wraz ze współpracownikami [50] zaproponowali wykorzystanie MeV-SIMS-ToF, w której cząsteczki są desorbowane z powierzchni za pomocą jonów o energii na poziomie megaelektronowoltów MeV (dotychczasowo stosowano kiloelektronowolty). Autorzy zwrócili uwagę na niszczący charakter badań, trudności związane z nierównomierną powierzchnią podłoża, na którym nanosi się materiał pisarski, oraz na przerwy w jego rozłożeniu na papierze. Na uwagę zasługuje również fakt, że technika MeV-SIMS wymaga zastosowania akceleratora cząstek, co niesie za sobą dodatkowe koszty i wymagania techniczne. W kolejnych publikacjach z roku 2019 (Moore i in.) [51] oraz 2021 (Barac i in.) [52] autorzy podkreślają problematykę analizy materiałów pisarskich na bazie wody, które ze względu na swoją wchłaniałość w podłożu mogą prowadzić do błędnych interpretacji zwłaszcza w przypadku ich krzyżowania się z innymi materiałami, takimi jak te na bazie oleju. W pierwszym z powyższych artykułów zaprezentowano dodatkową metodę spektroskopii, wykorzystującą PIXE. Autorom udało się jednak poprawnie wskazać kolejność jedynie w czterech na sześć skrzyżowań.

Pomimo ogromnych możliwości spektroskopii mas jonów wtórnych w identyfikacji składu pierwiastkowego próbek metoda ta, podobnie jak poprzednia, również jest podatna na mieszanie się materiałów kryjących, dodatkowo prowadząc do ich zniszczenia.

2.7. Inne metody

Na przestrzeni lat zaprezentowano również metody nienależące do żadnej z wymienionych wcześniej kategorii.

W 1977 r. Strach [53] zaproponował, aby w celu ustalenia kolejności naniesienia elementów graficznych na dokument oceniać zwięźenie drugiej w konfiguracji linii w obrębie przecięcia. Autor tłumaczył to zjawisko tym, że pierwsza z nich pozostawia relief, natomiast druga w kolejności linia przy przecięciu, natrafiając na ten obszar, zwięża się przy wyjściu z niego. Niestety zależność

tę zauważono tylko w sytuacji, gdy skrzyżowania zostaną nakreślone za pomocą długopisu. W efekcie udało się poprawnie określić kolejność zaledwie w 17% przypadków. Z kolei już w 1978 More [54] w swym artykule opisał wykorzystanie „folii używanej do ściągania ukrytych odcisków palców” w badaniu kolejności kreślenia linii graficznych. Służy ona do odbicia powierzchni skrzyżowania, dzięki czemu obrazowane zostają na niej głównie krawędzie linii, a więc fragmenty położone wyżej, bez wnętrza reliefu, co pozwala na ocenę ich ciągłości, a następnie określić, która z nich została nakreślona jako pierwsza, a która jako druga. Następnie w roku 1979 Waeschle [55] wykonał analizę obrazów próbek skrzyżowań za pomocą mikroskopu elektronowego. Substancje odpowiadające danemu narzędziu pisarskiemu były odzwierciedlane na powierzchni, a następnie poddawane ocenie wizualnej zmierzającej do ustalenia, która z nich została wykonana w drugiej kolejności. Autor pozytywnie konkluduje swoje odkrycia i zachęca do dalszych badań w tym kierunku. W roku 1982 Igoe i Reynolds [56] zaproponowali metodę zbliżoną do przedstawionej wcześniej przez Stracha, zalecając jednakże zastosowanie specjalnego papieru – Kromekote. Stwierdzili oni, że przy zachowaniu ostrożności metoda ta nie niszczy dokumentu, zbierana jest jedynie wierzchnia warstwa materiału pisarskiego, a więc jego część zostaje na papierze Kromekote. Jej efektywność oceniono na 80%, natomiast w 20% z odbitych przecięć nie było możliwe jednoznaczne określenie kolejności. Należy jednak nadmienić, że metoda ta wykazuje brak skuteczności w przypadku linii sporządzonych płynnym atramentem oraz ołówkiem. Trzy lata później Jasuja i in. [57] wyszli z propozycją nowej metody, wykorzystującej ocenę reliefów w świetle skośnym. Pomimo braku wyraźnego modelowania 3D analiza ta opierała się na tej samej zasadzie, czyli ustaleniu ciągłości wgłębień linii. W ponad 90% przypadków autorom udało się prawidłowo określić kolejność, jednakże aż w sześciu wyniki były błędne. Leung i Leung [58] w 1997 r. wydali artykuł podsumowujący dotychczasową wiedzę na temat metody podnoszenia z zastosowaniem papieru Kromekote. Autorzy wykazali szereg czynników wpływających na wyniki badań, takich jak np. za silny lub słaby nacisk, czas utworzenia próbki, szybkość kreślenia, różnice w intensywności reliefów czy ich szerokość. Przebadali w swoich próbach liczne skrzyżowania, w efekcie określając metodę jako podatną na ludzki błąd. W 2013 r. Lee in. [59] zaproponowali w swojej pracy zgoła inną, jednak również opartą na odbiciu analizę – tym razem taśmy klejącej. Badania wykonano na skrzyżowaniach odcisku pieczętka z nadrukiem wykonanym drukarką atramentową. Procedura obejmowała wykonanie zdjęcia badanego obszaru, a następnie delikatne usunięcie wierzchniej warstwy skrzyżowania przy użyciu taśmy, po czym ponowne sfotografowanie analizowanego obszaru. Następnie porównano obrazy

w celu analizy, który materiał pojawił się po usunięciu górnej warstwy, co wskazuje na obecność środka pisarskiego znajdującego się poniżej. Autorzy nie dostarczyli dokładnych danych dotyczących liczby poprawnych wyników (Ryc. 5).

Mnogość nowych pomysłów niezaliczających się do żadnej z kategorii wykazuje zaangażowanie naukowców i chęć rozwoju, jak i rozwikłania problematyki krzyżujących się linii.

2.8. Mieszane metody

Wśród analizowanych artykułów znalazły się również propozycje łączenia odmiennych metod w celu analizy skrzyżowań elementów graficznych.

W 1983 r. Mathyer i Pfister [60], bazując na wcześniejszych pracach, w swoim artykule opisali wykorzystanie papieru Kromekote i mikroskopu elektronowego, proponując tym samym ich połączenie w celu uzyskania uzupełniających się wyników. Pozwoliłoby to na zebranie większej ilości informacji o skrzyżowaniach stanowiących podstawę dla wniosków o kolejności kreślenia. Jednakże już rok później Koons [61] wykonał badania zmierzające do potwierdzenia lub wykluczenia tezy wcześniejszych autorów. Konkluduje on, że występują pewne rodzaje skrzyżowań, przy których sprawdza się tylko jedna ze wspomnianych metod, dlatego użyte wspólnie mogą przyczynić się do większej skuteczności. W przypadku przygotowania próbek do badań SEM należy wyciąć drobny fragment skrzyżowania, a następnie powlec go specjalną powłoką. Pominięcie tego etapu zdecydowanie pogarsza możliwości powiększające aparatury. Z kolei zastosowanie w pierwszej kolejności papieru Kromekote nie wpływa na wyniki otrzymane przy pomocy mikroskopii elektronowej, aczkolwiek próbki mogą ulec pewnemu spłaszczeniu, dlatego autor sugeruje wykonanie większej liczby badań sprawdzających. Główną wadą obu technik jest w nich brak możliwości obrazowania materiałów pisarskich na bazie wody. Papier Kromekote sprawdza się natomiast w przypadku linii homogenicznych, jednak z wyłączeniem skrzyżowań wykonanych ołówkiem. W 2017 r. Li i Ouyang [62] przeprowadzali badania za pomocą mikroskopu stereoskopowego, jednak z zastosowaniem innych metod niż dotychczasowe. Badali właściwości fizyczne, fluorescencję oraz ściągali wierzchnią warstwę skrzyżowania. Próby ślepe, w których brało udział pięcioro testujących, wykazały 100% skuteczności. Wang i Li [63] w 2011 r. wykorzystali kombinację mikrospektroskopii w podczernieni z transformatą Fouriera (FTIR) oraz skaningowej mikroskopii elektronowej z mikroanalizą rentgenowską (SEM-EDX, *scanning electron microscopy with energy dispersive X-ray spectroscopy*) jako analityczno-chemiczną metodę o zwiększonej dokładności. Dzięki temu zabiegowi możliwa była obserwacja migracji cząsteczek

pomiędzy odciskiem pieczętki a nadrukiem. W celu ustalenia sekwencji naniesień kreśleń badano stosunki wysokości pasm widma FTIR, natomiast SEM pozwoliło na mapowanie powierzchni. W efekcie autorzy otrzymali pełną informację o składzie chemicznym elementów skrzyżowań. W 2016 r. Kim i in. [64] zaproponowali połączenie zogniskowanej wiązki jonów (FIB, *focus ion beam*) z SEM-EDX w dwuwiązkowej maszynie pozwalającej na jednoczesne badanie tej samej powierzchni za pomocą obu metod i w efekcie – na otrzymanie jej obrazu oraz komplementarnej informacji na temat składu pierwiastkowego. W próbach ślepych brało udział dwunastu ekspertów i osiągnięto 100% wyników prawidłowo określających kolejność naniesienia elementów graficznych.

Dla każdej z metod dostrzegalne są zarówno mocne strony, jak i ograniczenia, dlatego tak ważna jest ich komplementarność w celu uzyskania wyczerpujących informacji pozwalających biegłemu na precyzyjną ocenę uzyskanych wyników.

3. Podsumowanie

Przedstawiony przegląd jest kolejną próbą oceny technik używanych w kryminalistycznych badaniach dokumentów do ustalania kolejności kreślenia elementów graficznych. Pozwala on również na zapoznanie się z rozwojem każdej z nich na przestrzeni kolejnych dekad. W przedstawionych w publikacjach technikach prym wiodą te nieniszczące, natomiast otrzymywane w ich rezultacie wyniki fałszywie pozytywne skłaniają ku wykluczeniu danego rozwiązania. Mnogość przeprowadzanych badań i ciągły rozwój w tej dziedzinie pokazują, jak ważne jest znalezienie najlepszych z metod. Wiele z wymienionych powyżej ma niezwykle potężny potencjał, jednak na wynik wpływa nie tylko zastosowana metodologia, ale często warunki, w jakich materiał dowodowy został sporządzony lub przechowywany. Autorzy liczą zatem, że przegląd ten pomoże czytelnikom w usystematyzowaniu dotychczasowej wiedzy i stanie się kolejnym krokiem w dalszym jej rozwoju.