

Le développement de la distillation en France au XIX^e siècle

Les apports de Jean-Baptiste Cellier-Blumenthal et d'Ernest Sorel

Jacques Breysse

Résumé Les appareils de distillation apparaissent dès le début de notre millénaire mais évoluent peu jusqu'à la fin du XVIII^e siècle. Au début du XIX^e siècle et jusqu'à la fin de la Première Guerre mondiale, suite à des besoins accrus en alcool et à une incitation de l'État, la France va être dans le domaine de la distillation, le cadre d'une intense activité de recherche et de développement d'innovations technologiques, mais aussi des premières réflexions sur la théorie de la distillation. Cet article retrace les innovations apportées durant toute cette période, et plus particulièrement les apports majeurs de Jean-Baptiste Cellier-Blumenthal et d'Ernest Sorel. Ces développements conduiront à une activité industrielle soutenue dans la deuxième moitié du XIX^e siècle, que ce soit en termes d'équipements, à l'exemple de l'entreprise Savalle, ou de procédés industriels, à l'image des activités des « Usines de Melle » dans la préparation industrielle des alcools.

Mots-clés Histoire, distillation, Jean-Baptiste Cellier-Blumenthal, Ernest Sorel.

Abstract **Development of the distillation in France during the 19th century: contributions of Jean-Baptiste Cellier-Blumenthal and Ernest Sorel**

Distillation is one of the most ancient separation techniques, since we find evidence of it during the first centuries of our era, within the work of Arabic alchemists. From this period, and during all the Middle Age, numerous "recipes" for preparing diverse "products" making use of this technique were proposed. The apparatus implemented (alembics), more or less sophisticated, stayed in use up to the end of the 18th century. At the beginning of the 19th century, intense researches and technical development activities were carried out in this field, in France, owing to needs in alcohol, and to an incentive of the French Government. The very first continuous plate column was developed by Cellier-Blumenthal (1768-1840) in 1818, followed by more and more advanced equipments (Derosne et Cail, Savalle). These developments led to a sustained industrial activity in the second part of the 19th century, with for example, in term of equipment manufacturing the "Savalle company" and in term of chemical processes, "Les usines de Melle" (alcohol synthesis by fermentation and separation by distillation). Besides, the first attempts of distillation modeling were undertaken in France at this time, with Sorel's works at the end of the 1890's, and those from some others like Ponchon and Savarit just after the First World War. Ernest Sorel (1850-1904) can be considered as the first to have established the calculation bases of continuous "rectification" (mass balance stage by stage between liquid and vapor at countercurrent) in 1889, date of its first publication. More generally, Sorel can be considered as a real pioneer in chemical engineering, because of his typical modeling approach, systematically used in all the different domains which were addressed by him (sulfuric acid industrial process, combustion in alcohol engines).

Keywords History, distillation, Jean-Baptiste Cellier-Blumenthal, Ernest Sorel.

La distillation est l'un des plus anciens procédés de séparation connus : on en trouve des traces dans les tout premiers siècles de notre ère, à travers les travaux des alchimistes arabes. À partir de cette époque et pendant tout le Moyen-Âge, de nombreuses « recettes » de préparation de produits de toute nature vont être proposées à l'aide de cette technique, mettant en œuvre des appareils (« alambics ») plus ou moins sophistiqués.

« L'eau de vie dissout les mœurs, épure les huiles, décrease. Sous l'ancien régime, le Languedoc, l'Orléanais, l'Angoumois sont les principales régions productrices d'eau de vie. Le Royaume est un grand pays exportateur – 250 000 hectolitres par an en 1787-1789 et 40 000 de genièvre. Mais la qualité est médiocre, l'alcool est souvent frelaté, malodorant à cause des mauvais moyens d'évaporation. » Ces commentaires d'André Guillerme [1] résument bien la

situation qui prévalait en France en matière de production d'alcool à la fin du XVIII^e siècle. Par ailleurs, la concurrence avec l'Écosse impliquait d'améliorer impérativement les techniques et le savoir-faire utilisés.

Mais la technique n'avait finalement que peu évolué depuis le Moyen-Âge, comme en témoigne l'appareil encore utilisé par Jean-Antoine Chaptal en 1785 (figure 1). Dès 1777, la « Société libre d'émulation pour l'encouragement des arts, métiers et inventions utiles de Paris » avait donc proposé un prix à celui qui trouverait « la meilleure manière de construire des fourneaux et des alambics propres à la distillation des vins pour en tirer de l'eau de vie » [2]. Cela sera le point de départ d'une recherche active d'innovations dans le domaine, en particulier dans le Languedoc, à l'exemple du chauffe-vin développé par Aimé Argand dans ses distilleries installées près de Montpellier [3], et des

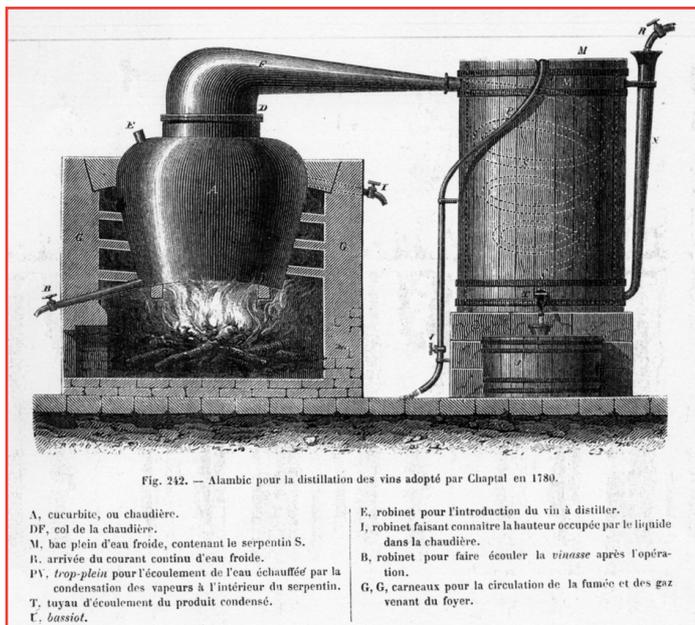


Fig. 242. — Alambic pour la distillation des vins adopté par Chaptal en 1780.

- | | |
|---|---|
| <p>A, cucurbit, ou chaudière.
 DF, col de la chaudière.
 M, bac plein d'eau froide, contenant le serpentis S.
 B, arrivée du courant continuel d'eau froide.
 PV, trap-plein pour l'écoulement de l'eau échauffée par la condensation des vapeurs à l'intérieur du serpentis.
 T, tuyau d'écoulement du produit condensé.
 C, bassinet.</p> | <p>E, robinet pour l'introduction du vin à distiller.
 J, robinet faisant connaître la hauteur occupée par le liquide dans la chaudière.
 B, robinet pour faire écouler la vinasse après l'opération.
 G, G, carneaux pour la circulation de la fumée et des gaz venant du foyer.</p> |
|---|---|

Figure 1 - L'alambic de Chaptal ([31], p. 429).

travaux de François-René Curaudeau qui s'intéressera à la technique en usage dans le cas des chaudières et des alambics [4].

Le XIX^e siècle : une période d'intenses recherches et d'innovations majeures pour la distillation en France

La première amélioration majeure est celle d'Edouard Adam vers 1800 qui, s'inspirant des « bouteilles de Woulf » [5], va développer un appareil horizontal pour la distillation du vin avec plusieurs contacts en série entre vapeur et liquide et des possibilités de soutirage en différents points (figure 2) [6]. Cet appareil avait un certain nombre d'avantages sur les alambics existants, en termes de productivité et de souplesse de fonctionnement. Il eut donc beaucoup de succès, mais aussi beaucoup de concurrents, les idées ayant présidé à sa conception étant reprises et développées par beaucoup d'autres. Entre 1801 et 1818, Louis-Sébastien Lenormand ne cite pas moins de vingt-sept demandes de brevets d'appareils à distiller [7] !

En dehors des recherches de productivité et de qualité de l'alcool par distillation à partir du vin, un autre moteur d'innovation de la technique va être relatif aux travaux d'étude d'un procédé de fabrication de sucre, non plus à partir de canne à sucre mais de betterave. Au tournant des

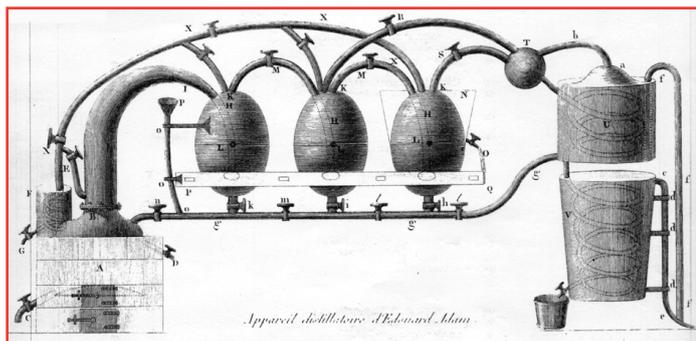


Figure 2 - L'appareil à distiller d'Edouard Adam [32].

XVIII^e-XIX^e siècles, la lutte sur mer avec les Anglais génère des problèmes d'approvisionnement en sucre, situation qui va encore se dégrader à partir de 1807 avec l'instauration du « blocus continental ». Les importations officielles en provenance des Antilles chutent drastiquement et on se met en urgence à chercher des sources de substitution à la canne à sucre [8]. Des travaux sont entrepris à partir de 1807-1808 pour développer l'extraction du sucre à partir soit du raisin, soit surtout de la betterave. Des essais prometteurs en Allemagne dans ce dernier cas avaient été examinés dès 1800 par une commission de l'Institut, mais malgré un avis favorable de sa part, n'avaient pas donné lieu à des développements industriels importants. Chaptal s'empare du sujet et va mettre au point un procédé industriel qu'il mettra en œuvre sur ses terres à Chanteloup [9]. C'est dans ce contexte qu'entre en scène Jean-Baptiste Cellier-Blumenthal (1768-1840) par un premier brevet sur le sujet en 1811, complété par deux autres brevets spécifiquement dédiés aux opérations de distillation et d'évaporation [10].

Nous ne connaissons pas les circonstances qui ont amené Cellier-Blumenthal à se lancer dans l'aventure du sucre de betteraves, mais en tous cas, il va proposer un procédé entièrement différent de celui de Chaptal, basé sur une extraction du sucre par l'alcool [11]. Le procédé nécessite, entre autres, une séparation de l'alcool par distillation et il va donc proposer une technologie nouvelle pour ce faire. Même s'il s'inspire certainement des nombreux appareils horizontaux qui étaient sur le marché, sa colonne, avec toutes ses variantes, telles que décrites dans les brevets de 1813 et 1818 (figure 3), présente un grand nombre d'innovations fondamentales par rapport à l'existant, à savoir : c'est le premier appareil vertical à plateaux pouvant fonctionner en continu ! Son invention aura un grand écho [12], et Cellier-Blumenthal recevra en 1816 l'une des quatre médailles d'or de la société d'encouragement [13].

Entre 1813 et 1818, Cellier-Blumenthal va travailler étroitement avec Pierre Armand Désiré Savalle (1791-1864) qui possédait plusieurs usines et distilleries dédiées à la

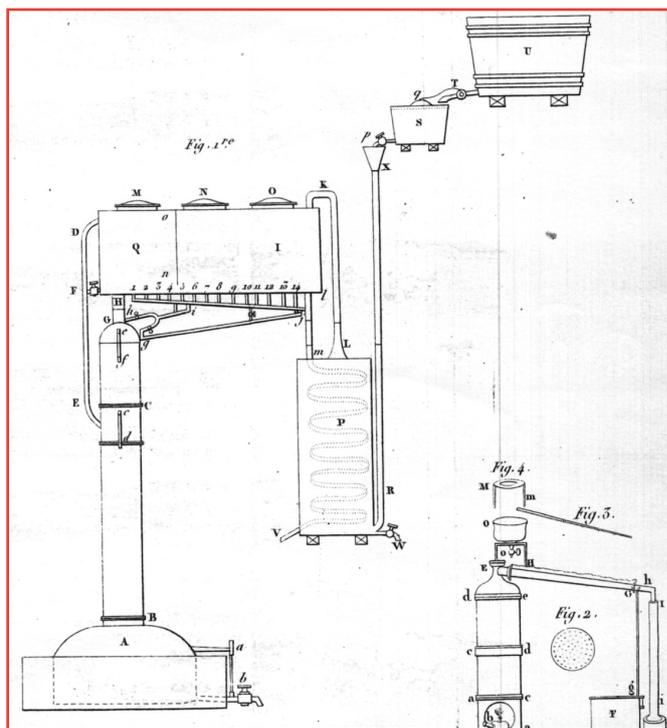


Figure 3 - L'appareillage décrit dans le brevet Cellier-Blumenthal de 1818 [10].

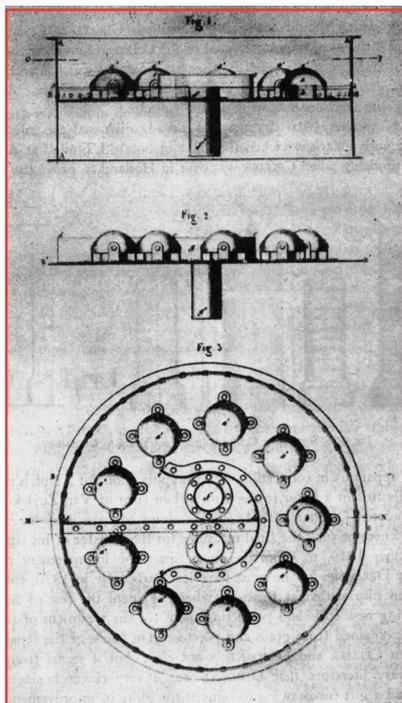


Figure 4 - Plateau à cloches (Cellier-Blumenthal) [33].

1823 et où il aura l'opportunité de prendre pas moins de quinze nouveaux brevets [15]. Il y décèdera en 1840. Derosne et son collaborateur puis associé Jean-François Cail (1804-1871) vont poursuivre le développement et l'amélioration des appareils dans leur atelier de Chaillot à Paris et devenir les plus importants fabricants d'appareils à distiller en France (figure 5).

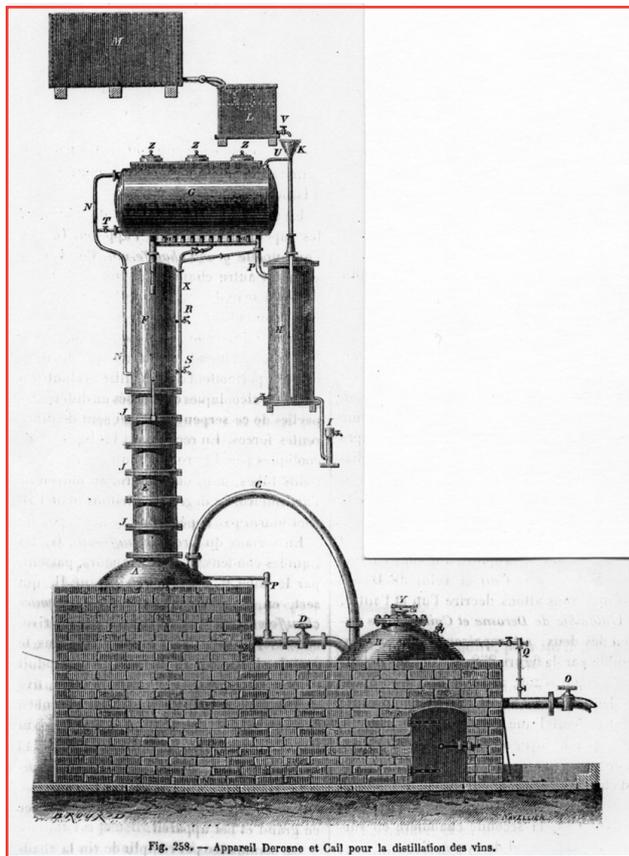


Figure 5 - L'appareil « Derosne-Cail » ([31], p. 473).

fabrication du sucre en Belgique. Pendant cette période, il améliore la conception des appareils, pour la distillation du vin et/ou de masses fermentées, et met en œuvre les premiers plateaux perforés, puis un peu plus tard (années 1820) des plateaux à cloches (figure 4). Quelques mois après avoir obtenu le troisième brevet sur le sujet (janvier 1818), il rompt avec Savalle et vend brusquement tous ses droits à Charles Louis Derosne (1780-1846), qu'il avait rencontré à Amsterdam l'année précédente [14]. Il se remet cependant à travailler dans le domaine des sucreries et distilleries dès 1820, mais depuis Bruxelles, où il s'installe définitivement à partir de

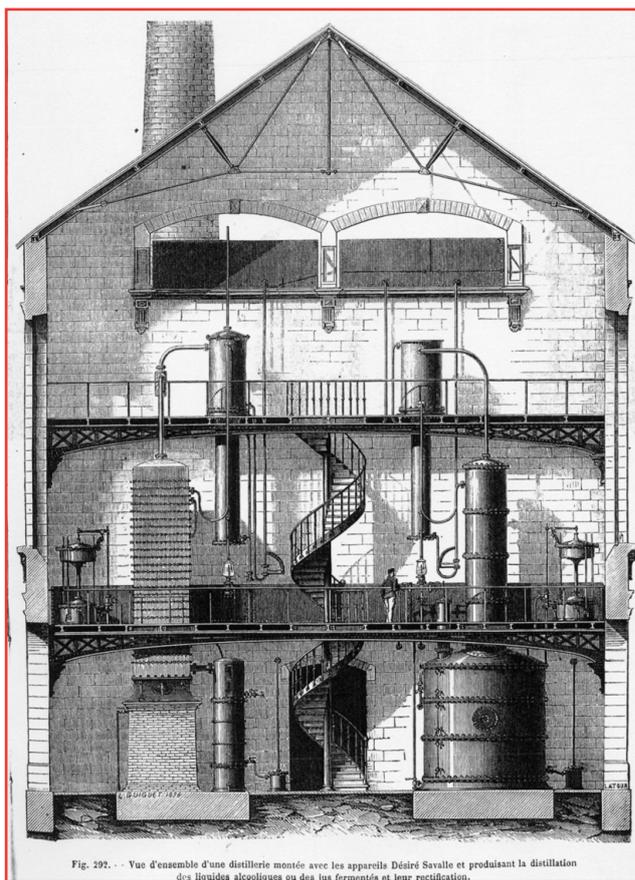


Figure 6 - La distillerie « Savalle » ([31], p. 537).

Ernest Sorel et les premières réflexions sur la théorie de la distillation

Dans la deuxième moitié du XIX^e siècle, le relais sera pris par les fils et petit-fils de l'ex-collaborateur de Cellier-Blumenthal, François Désiré Savalle puis Albert Savalle. Jusqu'à la fin du siècle, leur entreprise sera la référence pour la fabrication des appareils à distiller l'alcool [16] (figure 6). Son dernier directeur technique sera Ernest Sorel, autre personnalité marquante du domaine au XIX^e siècle.

Ernest Sorel (1850-1904) (figure 7), ingénieur de l'École Polytechnique (1871), Corps des Manufactures de l'État, peut être considéré comme un véritable pionnier du génie des procédés, à travers des travaux très variés : il va utiliser une « approche modélisation » quasi systématique dans toutes ses études faites en dehors de la distillation (procédés industriels de production d'acide sulfurique, combustion dans les moteurs à alcool).

Il commence sa carrière dans l'industrie privée (Malétra à Rouen et Saint-Denis, Saint-Gobain à l'usine de l'Oseraie dans le Vaucluse) et va devenir un grand spécialiste des procédés de chimie minérale. Il



Figure 7 - Ernest Sorel (1850-1904), un véritable pionnier du génie des procédés. Archives de la famille (reproduit avec l'aimable autorisation de la famille).

Équilibres liquide-vapeur, loi de Raoult et distillation

Le calcul des colonnes à distiller nécessite la connaissance de ce que l'on appelle les « équilibres liquide-vapeur » (ELV), à savoir la relation entre les compositions des phases liquide et vapeur en équilibre thermodynamique, en fonction de la pression et de la température.

Dans son ouvrage de 1899, Sorel écrit : « Jusqu'ici les physiciens n'ont découvert aucune loi relative à ce cas [la température d'ébullition et la composition des vapeurs émises par un mélange miscible en toute proportion]... il nous faut donc recourir à l'expérience » [a].

La loi de Raoult

Cela n'était pas totalement vrai, mais à cette date le transfert de l'information ne s'était pas encore fait entre physico-chimistes, thermodynamiciens et spécialistes de distillation ! La recherche d'une loi permettant de déterminer la pression de vapeur des constituants d'un mélange homogène avait été un objectif récurrent tout au long du XIX^e siècle [b]. Celle relative aux cas de constituants non miscibles avait été identifiée assez tôt dans la première moitié du siècle, mais dans le cas des mélanges homogènes, il faudra attendre Raoult en 1887 pour avoir une première relation, toutefois encore approchée. Dans le cas d'un mélange binaire homogène en toute proportion, la pression de vapeur de chacun des deux constituants est proportionnelle à sa fraction molaire dans le liquide et à sa tension de vapeur [c] :

$$p_1 = p^{\circ}_1 x_1 \text{ et } p_2 = p^{\circ}_2 x_2$$

où p_1 et p_2 sont les pressions partielles des constituants 1 et 2, p°_1 et p°_2 les tensions de vapeur des constituants 1 et 2 purs, et x_1 et x_2 les fractions molaires des constituants 1 et 2 dans le liquide ($x_1 + x_2 = 1$). Ce qui peut aussi s'exprimer sous la forme :

$$(p^{\circ}_1 - p_1) / p^{\circ}_1 = x_2$$

Cette loi est communément appelée la **loi de Raoult**. C'est en effet Raoult [d] qui le premier, en 1887 [e], mis en évidence le fait que le terme $(p^{\circ}_1 - p_1) / p^{\circ}_1$ était proportionnel, non pas exactement à x_2 , mais à une teneur en constituant (2) sous forme d'une concentration (mole de (2) dans 100 g de (1)), associée à une constante K, selon la relation :

$$K = [(f - f') / fP] \cdot M$$

où f est la tension de vapeur du « dissolvant » pur, f' sa pression de vapeur après dissolution (p°_1 et p_1 avec l'indice 1 pour le « dissolvant »), P le poids de soluté dans 100 g de « dissolvant » (P_2 avec l'indice 2 du soluté), M la masse molaire du soluté (M_2 avec l'indice 2 du soluté), et K une constante.

En reprenant les notations de Raoult, avec les indices précédents, on peut réécrire la relation comme suit :

$$(p^{\circ}_1 - p_1) / p^{\circ}_1 = K \cdot P_2 / M_2$$

Si on essaie d'exprimer K en fonction de x_2 , on obtient :

$$K = M_1(1 - x_2) / 100$$

Dans l'hypothèse où la solution est très diluée, $(1 - x_2)$ est peu différent de 1, d'où :

$$K \text{ est équivalent à } M_1 / 100$$

Et l'on peut en effet vérifier dans l'article original de Raoult, où ce dernier donne des valeurs de la constante K , sa quasi-proportionnalité avec le centième de la masse molaire du « dissolvant » M_1 :

	M_1	K
Sulfure de carbone	76	0,8
Acétone	58	0,59
Méthanol	32	0,33
Eau	18	0,185

Le calcul des colonnes à distiller

À une pression ou une température donnée, dans le cas de solutions binaires « idéales », la loi de Raoult permet effectivement de déterminer

la composition de la vapeur en équilibre avec un mélange liquide, ou inversement [f]. La connaissance de ces éléments peut permettre le calcul du nombre d'étages théoriques d'une colonne à distiller pour la séparation de deux constituants d'un mélange. C'est cette approche qui va conduire, entre autres, aux méthodes de McCabe et Thiele et de Fenske développées dans les années 1920 et au début des années 1930 aux États-Unis.

En fait, les travaux français qui vont se développer dans l'immédiat après-guerre vont avoir une approche différente des travaux américains [g]. Une des critiques, que l'on peut faire aux méthodes basées exclusivement sur les équilibres, est de ne pas intégrer les aspects thermiques (chaleurs « sensibles », de vaporisation et de mélange). C'est ce qu'avait bien compris Sorel, qui avait toujours porté une attention toute particulière à ces aspects, en effectuant des bilans d'énergie presque systématiquement en complément aux bilans matières. C'est donc très vraisemblablement à sa suite que va se développer en France une méthodologie de calcul de colonnes à distiller basée sur la mise en œuvre de diagrammes enthalpiques isobares, où l'on représente l'enthalpie du mélange (liquide et vapeur) en ordonnée en fonction de sa composition en abscisse [h]. Des droites étaient tracées entre les enthalpies vapeur et liquide des produits purs (en l'absence de données plus précises) et les points en équilibre sur ces droites étaient repérés à partir de données d'équilibre expérimentales. Cette méthodologie aura un indéniable succès en raison de son caractère rigoureux, et jusqu'à un passé récent, elle est mentionnée dans tous les ouvrages généraux de distillation.

[a] Sorel E., *Distillation et rectification*, Carré et Naud, 1899, p. 98.

[b] Beaucoup de physiciens et/ou de chimistes se sont penchés sur ce problème. Entre autres, Magnus (1836), Regnault (1862), Berthelot (1863), Wullner (1866), Gernez (1875), Naumann (1877), Duclaux (1878)... En 1862, Victor Regnault écrit dans une des conclusions d'un rapport de synthèse (*Mémoires de l'Académie des Sciences*, 1862, t. 26, p. 715) que si l'on obtient des températures d'ébullition stationnaires, la température de la vapeur « ne paraît pas présenter de rapports simples avec les températures d'ébullition des deux substances isolées sous la même pression. »

[c] Si une solution liquide et la vapeur à son contact sont en équilibre à la pression P et à la température T , on doit avoir l'égalité des potentiels chimiques : $\mu_i^l(P,T,\dots) = \mu_i^v(P,T,\dots)$.

Si les deux phases sont idéales, $\mu_i^l = \mu_i^{l*} + RT \ln(x_i)$ et $\mu_i^v = \mu_i^{v*} + RT \ln(y_i)$.

Pour le corps pur i liquide, on peut écrire :

$$\mu_i^l(P,T) = \mu_i^{l*}(P^{\circ}_i,T) = \mu_i^{v*}(P^{\circ}_i,T) = \mu_i^{v*}(P^{\circ}_i,T) + RT \ln(P^{\circ}_i/P^{\circ})$$

Pour le corps pur i vapeur, dans l'hypothèse du gaz parfait :

$$\mu_i^v(P,T) = \mu_i^{v*}(P^{\circ}_i,T) + RT \ln(P/P^{\circ}_i)$$

D'où $P^{\circ}_i x_i = y_i P = P_i$.

[d] François-Marie Raoult (1830-1901) démarra sa carrière dans l'enseignement secondaire (lycée de Reims, collège de Saint-Dié, lycée de Sens) où il put compléter sa formation initiale et préparer une thèse de physique qu'il soutint en 1863 à Paris. En 1867, il est nommé chargé de cours en chimie à la Faculté des sciences de Grenoble où il fera toute sa carrière. Prix La Caze en 1883, correspondant de l'Institut la même année, il reçoit la « Davy Medal » de la Royal Society en 1892.

[e] Raoult F.-M., Loi générale des tensions de vapeur des dissolvants, *C.R. Acad. Sci.*, 1887, 104, p. 1430.

[f] $p_1 = p^{\circ}_1 x_1$ (loi de Raoult) = $P y_1$ et $p_2 = p^{\circ}_2 x_2 = P y_2$. Avec α (la « volatilité relative ») = $p^{\circ}_1 / p^{\circ}_2$, on obtient la relation suivante entre le titre molaire dans la vapeur et celui dans le liquide en équilibre :

$$y_1 = \alpha x_1 / [(\alpha - 1)x_1 + 1]$$

Presque dix ans avant Raoult, Émile Duclaux (1840-1904) avait essayé, à l'aide de « distillations fractionnées », de corrélérer les compositions vapeur et liquide supposées être en équilibre d'un certain nombre de mélanges (eau-alcool, eau-acide organique), en développant une modélisation empirique mettant en jeu un paramètre « m » défini par :

$$da / de = ma / (a + e)$$

où da et de sont les volumes de a et e dans la vapeur, a et e les volumes de a et e dans le liquide.

Cette modélisation, qui aura un certain écho auprès des spécialistes de la distillation (Sorel, Barbet, Mariller), n'aura toutefois pas de suites.

Voir Duclaux E., Sur les forces élastiques des vapeurs émises par les mélanges de deux liquides, *Annales de Chimie et de Physique*, 1978, 5^e série, t. XIV, p. 305.

[g] Ce n'est pas le moindre paradoxe que de constater que deux ans après Walker, en 1925, qui cite la loi de Raoult sous sa forme thermodynamique, C. Mariller, auteur en France d'un ouvrage de référence en distillation (*Distillation et rectification des liquides industriels*, Dunod, 1925), ne mentionne toujours la loi de Raoult que sous sa forme initiale avec la constante K (voir p. 15 et 16).

[h] Marcel Ponchon, Études graphiques de la distillation fractionnée industrielle, *La Technique Moderne*, 1921, XIII, n° 1, p. 20 et 1921, XIII, n° 2, p. 55 ; Paul Savarit, Études graphiques des colonnes à distiller les mélanges binaires et ternaires, *Chimie et Industrie*, N° spécial mai 1923 (compte rendu du congrès international des combustibles liquides octobre 1922). Ces deux auteurs ont développé quasiment la même méthode indépendamment l'un de l'autre semble-t-il, sans que l'on sache s'ils se sont rencontrés ou ont échangé à son propos ! À noter qu'ils font tous les deux uniquement référence à Sorel comme source bibliographique.

publie en particulier un ouvrage de référence sur la fabrication de l'acide sulfurique [17], en 1887, où il propose, entre autres, un modèle cinétique de la réaction chimique dans les « chambres de plomb » pour comprendre et mieux maîtriser la conduite des unités [18]. À partir de 1888, il change complètement de domaine. Il est d'abord embauché dans un laboratoire privé [19] où il va se consacrer à l'étude de la distillation, avant de rejoindre l'entreprise Savalle au début des années 1890. Il commence à écrire des articles dans le domaine dès 1889, et publiera ses ouvrages majeurs à partir de 1893 [20]. Il va être à cet égard l'un des premiers, sinon le premier [21], à définir les bases du calcul des colonnes à distiller (rectification continue, bilans matières étage par étage à contre courants) [22]. La difficulté à laquelle il va se heurter concerne une donnée de base nécessaire à ces calculs, à savoir les « équilibres liquide/vapeur ». Les valeurs expérimentales étaient à l'époque limitées et approximatives (concentrations exprimées en volume) et ne permettaient pas de calculs rigoureux. Un aspect important de son approche concernera la prise en compte détaillée des aspects énergétiques, que ce soit au niveau des échanges thermiques (bouilleur et condenseur) ou à celui des bilans thermiques mettant en jeu les chaleurs de vaporisation. Un certain nombre d'éléments relatifs au calcul des colonnes à distiller et à la publication d'une des toutes premières relations dans le domaine des équilibres liquide/vapeur due à François-Marie Raoult sont rappelés dans l'*encadré*.

Après avoir quitté l'entreprise Savalle, vraisemblablement au moment de sa liquidation en 1898, il va se consacrer à des missions ponctuelles d'enseignant et de consultant jusqu'à sa mort prématurée en 1904, à l'âge de 54 ans. C'est notamment dans le contexte de missions pour le compte du Ministère de l'Agriculture qu'il s'intéressera à un nouveau domaine, celui des combustions dans les moteurs à alcool, et qu'il publiera son ultime ouvrage technique [23].

Prolongement des travaux de Sorel : la méthodologie de calcul des colonnes de Ponchon et Savarit

Les travaux de Sorel auront évidemment un certain retentissement dans la communauté scientifique [24] et dans les premières décennies du XX^e siècle, d'abord auprès des spécialistes français de la distillation qui ne manqueront pas d'évoquer ses apports, à l'exemple de Charles Mariller [25] et surtout de Marcel Ponchon et Paul Savarit, auteurs d'une méthode originale de calcul de séparation au tout début des années 1920 inspirée de ses travaux [26], mais aussi auprès des premiers grands représentants du « chemical engineering » émergeant aux États-Unis [27].

Paul Savarit (1888-1972) sera longtemps le directeur technique, puis le directeur général, jusqu'à sa retraite en 1957, de la société « Les Usines de Melle », société qui va elle aussi marquer cette époque dans le domaine de la synthèse par fermentation et de l'isolement par distillation de l'alcool. On retrouve au départ l'ancien adjoint, puis successeur de Derosne, Jean-François Cail. À la fin des années 1860, ce dernier eut le projet de créer une sucrerie dans la région de Melle (sa région d'origine). Il meurt en 1871 avant de voir la création l'année suivante de la « Société sucrière des deux Sèvres » par son fils Alfred Cail. La société rencontre un certain nombre de difficultés économiques et est rachetée en 1886. Elle devient « Charbonneaux, Lelarge et Cie » et va se lancer avec succès dans la distillation industrielle de l'alcool, incluant

aussi la synthèse par fermentation à partir de matières premières variées. Elle va développer de nombreux procédés innovants, à l'appui d'une culture « développement de procédés » unique dans le monde industriel de l'époque [28].

Cette longue période où l'inventivité française a été particulièrement active et brillante va s'achever avec la fin de la Première Guerre mondiale. Au début des années 1920, le relais sera principalement pris par les États-Unis, dans le contexte du « chemical engineering » qui prend tout son essor à cette époque. Ce sera par exemple la publication d'un premier ouvrage de synthèse américain sur la distillation en 1922 [29], suivie de celle d'articles marquants comme ceux de McCabe et Thiele en 1925 et de Fenske en 1932 [30].

L'auteur remercie la famille d'Ernest Sorel pour son appui à ce travail, ainsi que le professeur Christian Jallut (Université Claude Bernard, Lyon) pour ses remarques et son apport à propos des aspects thermodynamiques.

Notes et références

- [1] Guillaume A., *La naissance de l'industrie à Paris. Entre sueurs et vapeurs. 1780-1830*, Ed. Champ Vallon, 2007, p. 158.
- [2] Le premier prix sera gagné par Baumé (aéromètre) et le second par l'Abbé Molline : « on a élargi la chaudière, diminué la hauteur [...] recouvert le chapiteau d'un réfrigérant » [1].
- [3] On utilise la future charge à distiller comme fluide froid pour condenser les vapeurs de l'opération précédente et préchauffer cette charge. Voir Dubrunfaut A.P., *Traité complet de l'art de la distillation* (2 vol.), Bachelier Ed., 1824, vol. 2, p. 12-14.
- [4] F.R. Curaudeau publiera plusieurs articles à ce sujet dans les Annales des Arts et Manufactures (AAM) entre 1803 et 1808. Par exemple : « De l'influence que la forme des alambics exerce sur la qualité des produits de la distillation », AAM, 1808, 28, p. 136.
- [5] Les « bouteilles de Woulf (ou Woulfe) », absorbeurs gaz/liquide en série, auraient été développées par l'Italien Angelo Saluzzo dès 1759 pour absorber de l'ammoniac. Woulf les utilisera un peu plus tard pour des réactions alcool/acide chlorhydrique gazeux (*Phil. Trans.*, 1767). Voir Forbes R.J., *A short history of the art of distillation*, E.J. Brill Ed., 1948, p. 291-292.
- [6] Brevet n° 453 du 29 mai 1801 et complément 2 juin 1801. On trouve une description détaillée de cet appareil dans tous les ouvrages sur la distillation du début du siècle, par exemple par J.-A. Chaptal en 1809 « Observation sur la distillerie des vins », AAM, 1809, 31, p. 267 et L.S. Lenormand en 1810 dans ses articles « Essai sur l'art de la distillation », AAM, 1810, 37, 38 et 39.
- [7] Parmi les plus notables, on peut citer Laurent Solimani (brevet en 1801), Isaac Bérard (brevet en 1805), Augustin Ménard (pas de brevet), Pierre Alegre... Voir à ce sujet Lenormand L.S., *Essai sur l'art de la distillation*, AAM, 1810, 37, p. 196.
- [8] Voir à ce sujet les articles sur « L'approvisionnement en sucre sous le blocus continental » : (a) « I - Proust et le sucre de raisin », Fourmier J., *L'Act. Chim.*, juin 1997, p. 31, et (b) « II - Chaptal et le sucre de betterave », Brançon D., Viel C., *L'Act. Chim.*, juillet 1997, p. 34.
- [9] Voir [8b] p. 36-38. Le procédé est lourd. Il comprend cinq phases : séparation (« râpage ») et pressage de la pulpe ; traitement et neutralisation du suc à 80° ; concentration à ébullition (noir animal), filtration, refroidissement et moulage ; séparation statique d'une mélasse résiduelle et lessivage ; raffinage : clarification à ébullition, filtration et blanchiment.
- [10] Brevet n° 727 du 16 novembre 1811 (avec M. Laporte) : « Appareil propre à réduire en pulpe les betteraves, à les mettre en digestion avec l'alcool au bain marie, à extraire la matière sucrée de cette digestion par la distillation et à cristalliser le produit de la distillation » ; Brevet n° 1886 du 24 novembre 1813 « pour des appareils propres à la distillation des vins, graines et pommes de terre » ; et Brevet n° 2266 du 12 janvier 1818 « pour des appareils destinés à la distillation continue et à l'évaporation ».
- [11] Cellier-Blumenthal, brevet de 1811, voir [10]. Le procédé comportait quatre phases : dessiccation de la pulpe broyée, extraction à chaud du sucre par l'alcool, concentration de la solution alcoolique par distillation, cristallisation et séchage.
- [12] Son principal concurrent sera Baglioni qui avait déposé un brevet d'appareil à distiller vertical un peu avant Cellier, le 24 août 1813, mais avec un design très différent, beaucoup plus compliqué et moins performant. Baglioni poursuivra Cellier devant les tribunaux, mais il sera débouté et condamné aux dépens. Voir Dubrunfaut A.P., *Traité complet de l'art de la distillation*, Bachelier Ed., 1824, vol. 2, p. 22 (Dubrunfaut, qui avait un moment douté, confirmera bien la primauté et l'inventivité de Cellier) et Forbes R.J., *A short history of the art of distillation*, E.J. Brill Ed., 1948, p. 303 (Forbes déclara : « We judge that Cellier may be truly regarded as the inventor of the modern fractionating column »).

- [13] « Parmi les alambics de nouvelle invention, celui du sieur Cellier-Blumenthal paraît donner le plus d'avantages. Il est établi d'après un système fort ingénieux puisqu'à l'aide de cet appareil on peut distiller, à volonté, des liquides et des matières épaisses ; on obtient simultanément des esprits à différents degrés et la liqueur fermentée, que l'on soumet à la distillation, ne contient, elle, que la plus faible portion d'alcool ; on est certain de l'en extraire. La Société d'encouragement, le Comité consultatif des arts ont donné les éloges qu'il mérite et il a pris un brevet d'invention [...] », Rapport n° 270 du 22 décembre 1817 cité par A. Guillaume, [1], p. 159.
- [14] Dans une conférence faite en 1948 à Londres à l'« Institution of Civil Engineers » sur « The Invention of Rectifying Column », Forbes attribue à une certaine lassitude l'attitude de Cellier (rupture avec Savalle, vente des droits des brevets à Derosne). Il est assez sévère à l'égard de Derosne qu'il qualifie de « brasseur d'affaires », « a man who finds devoted collaborators and pockets all the fame that they deserve. »
- [15] Forbes R.J., *A short history of the art of distillation*, E.J. Brill Ed., 1948, p. 313.
- [16] En raison de ses diverses innovations technologiques, l'entreprise Savalle (Maison A. Savalle Fils & Cie) recevra de nombreuses récompenses, comme par exemple des Grands Prix aux expositions universelles de 1878 et 1889.
- [17] Sorel E., *Fabrication de l'acide sulfurique et des engrais chimiques*, Dunod, 1887.
- [18] Breyse J., Fabrication de l'acide sulfurique et des engrais chimiques : quand Ernest Sorel faisait du « génie des réacteurs », *Documents pour l'histoire des techniques*, 2009, 17, p. 209.
- [19] Laboratoire pour l'étude des industries agricoles, fondé par G. Péreire, cité par Sorel E., *C.R. Acad. Sci.*, 1889, 108, p. 1320.
- [20] Son premier article dans le domaine est : « Sur la rectification de l'alcool », *C.R. Acad. Sci.*, 1889, 108, p. 1128. Ses ouvrages sont : *La rectification de l'alcool*, Encyclopédie des aides mémoires, Gauthier-Villars/Masson, 1893 ; *La distillation*, Encyclopédie des aides mémoires, Gauthier-Villars/Masson, 1895 ; et *Distillation et rectification industrielles*, Carré et Naud, 1899.
- [21] E. Hausbrand publie en 1893 un ouvrage sur le même sujet : *Rectifieur- und Destillir-apparate*, Julius Springer.
- [22] « La théorie mathématique des colonnes de rectification dans le cas de mélanges binaires a été définie pour la première fois par Ernest Sorel, qui a calculé l'enrichissement progressif plateau par plateau au moyen de bilans matières et énergie entrée/sortie de chaque étage et en considérant que l'équilibre thermodynamique était réalisée entre les vapeurs et le liquide », Walker H.W., Lewis W.K., McAdams W.H., *Principles of chemical engineering*, McGraw-Hill, 1923, p. 594.
- [23] Sorel E., *Carburant et combustion dans les moteurs à alcool*, Dunod, 1904.
- [24] Sorel n'aura pas que des admirateurs, mais aussi des contradicteurs déterminés comme Émile Barbet, autre spécialiste connu du domaine à l'époque, avec qui il aura une grande polémique à propos de la manière de représenter les équilibres liquide/vapeur, et également concernant des aspects comme la comparaison continu/discontinu, le rôle du condenseur... Barbet publiera un livre quasiment dédié à toutes ces controverses : *La rectification et les colonnes rectificatrices en distillerie*, E. Bernard Ed., 1895.
- [25] Mariller C., *La distillation fractionnée et la rectification*, Dunod, 1917.
- [26] Ponchon M., « Études graphiques de la distillation fractionnée industrielle », *La Technique Moderne*, 1921, XIII(1), p. 20 et XIII(2), p. 55 ; Savarit P., « Études graphiques des colonnes à distiller les mélanges binaires et ternaires », *Chimie et industrie*, N° spécial mai 1923 (compte rendu du congrès international des combustibles liquides, octobre 1922).
- [27] Par exemple W.H. Walker et al. [22].
- [28] La société changera de nom à plusieurs reprises avant de prendre le vocable « Les Usines de Melle » en 1937. Sa production concerne au début l'éthanol sous toutes ses formes, mais aussi les alcools isobutylique et amylique. Elle va très vite développer un grand savoir-faire technique, en sachant diversifier ses matières premières (betteraves à l'origine, mélasses, « flegmes », eaux de vie), et à partir de 1900 en adoptant un procédé de préparation original à partir de « grains », le procédé « amylo ». Chargée par la Défense Nationale pendant la Première Guerre mondiale d'étudier la production d'acétone à partir des matières amylicées, elle met au point un procédé de fermentation butylacétonique qui lui permet d'assurer les besoins de la Défense Nationale jusqu'à la fin de la guerre. Cette réussite décide de l'orientation de la société. En 1921, elle crée une structure de recherches qu'elle axe sur la chimie de l'alcool. Progressivement, entre les deux guerres, elle va étendre ses domaines de production aux solvants et à la chimie dérivée. Grâce aux redevances des brevets consécutifs à de nombreuses innovations, la société réussira à résister à la crise économique des années 30, avant d'autres évolutions à partir de 1937. Voir à ce sujet : Pineau S., *Les Usines de Melle : un siècle de chimie, des pionniers à la multinationale*, Geste Ed., 1994.
- [29] Robinson C.S., *Elements of Fractional Distillation*, McGraw-Hill, 1922.
- [30] McCabe W.L., Thiele E.W., *I.E.C.*, 1925, 17, p. 605 ; Fenske M.R., *I.E.C.*, 1932, 24, p. 482.
- [31] Figuier L., *Les merveilles de l'industrie*, tome 4, 1876.
- [32] Lenormand L.S., *Annales des Arts et Manufactures*, tome 37, 1810, p. 158 et suivant, Pl. 407.
- [33] Forbes R.J., *A short history of the art of distillation*, Leiden, E.J. Brill, 1948, p. 312.



Jacques Breyse

est chercheur attaché au CDHTE-CNAM* et consultant en génie des procédés auprès de la société Processium. Il a été ingénieur en génie des procédés R & D dans le groupe Rhône-Poulenc puis dans la société Rhodia (1966-2002). En 1998, il a reçu, conjointement à d'autres collègues, le Prix de la recherche du groupe Rhône-Poulenc pour des travaux dans le domaine de la modélisation cinétique des phénomènes chimiques (effets thermiques).

* Centre d'histoire des techniques et de l'environnement (CDHTE-CNAM, Paris), 5 rue du Vertbois, F-75141 Paris Cedex 03. Courriel : jbreysse2@wanadoo.fr

www.lactualitechimique.org
 Connaissez-vous bien le site de l'AC ?

Vous y trouverez :

- le sommaire et l'éditorial du dernier numéro
- des actualités
- un moteur de recherche

Et aussi :

- les articles en ligne (certains accessibles gratuitement, d'autres au prix de 4€)
- les archives des numéros thématiques (depuis 1999) ou à rubriques (depuis 2000)

Sans oublier que vous pouvez également :

- acheter un numéro en pdf
- vous abonner à la version électronique

Alors vite, à votre souris !