



Rendiconti
Accademia Nazionale delle Scienze detta dei XL
*Memorie e Rendiconti di Chimica, Fisica,
Matematica e Scienze Naturali*
141° (2023), Vol. IV, fasc. 1, pp. 243-249
ISSN 0392-4130 • ISBN 978-88-98075-55-3

Thermodynamics and the free energy of chemical substances: l'introduzione della termodinamica di Gibbs nella comunità dei chimici

RENATO LOMBARDO

Dipartimento di Scienze e Tecnologie Biologiche, Chimiche e Farmaceutiche,
Università degli Studi di Palermo, viale delle Scienze, Ed. 17, 90128, Palermo
E.mail: renato.lombardo@unipa.it • ORCID: 0000-0002-3401-7180

Abstract – A century after its initial publication, G.N. Lewis and M. Randall's book remains a significant milestone in the long and convoluted journey that led the ideas and models of thermodynamics to become an indispensable part of every chemist's knowledge. Lewis's approach to thermodynamics, developed through extensive and ambitious research, successfully merged two seemingly incongruent perspectives that had emerged in the late 19th century. With great insight, Lewis introduced new concepts to make the approach more precise and comprehensive. From the outset, the text clearly demonstrates the close connection between its content and Lewis's research work. Through the book, Gibbs's view of free energy assumed a central role in chemical thermodynamics for the first time, a position they still hold today. Its impact on the conceptualization of chemical thermodynamics remains unchanged to this day and continues to shape the modern teaching of this discipline.

Keywords: thermodynamics, Gibbs energy, chemistry education, history of chemistry, textbooks

INTRODUZIONE

Gilbert N. Lewis è stato una figura centrale nello sviluppo della chimica fisica e in particolare della termodinamica chimica. Il suo programma di ricerca ha portato la termodinamica chimica nella piena maturità [13]. Il successo di questo approccio nella comunità dei chimici si deve in non piccola parte alla pubblicazione nel 1923 del libro *Thermodynamics and the free energy of chemical substances* [26].

Ad un secolo di distanza dalla sua prima pubblicazione, questo libro rimane un passaggio cruciale nella lunga e tortuosa via che ha portato le idee e i modelli della termodinamica a costituire una parte irrinunciabile della conoscenza di ogni chimico [25].

1. Gli autori

Per comprendere l'origine e lo sviluppo del testo è utile richiamare qualche breve informazione sui suoi autori, richiamando una parte della letteratura esistente per eventuali approfondimenti.

Questo è molto facile per la figura di Gilbert Newton Lewis (1875-1946) che è unanimemente considerato uno dei padri della Chimica Fisica. Oltre alla breve biografia scritta da Hildebrand [9], si possono reperire numerose informazioni sulla sua vita e il contesto scientifico in cui ha operato anche nel ricco testo di Servos [29]. In questa sede basterà solamente ricordare alcuni aspetti salienti. Nato in Massachusetts nel 1875, conseguì il Ph.D. nel 1899 ad Harvard. [3, 29] Successivamente venne assunto al MIT e nel 1912 accettò l'offerta della University of California e si trasferì a Berkeley dove fu nominato preside del College of Chemistry, una carica che mantenne per 34 anni, fino alla sua morte che lo colse nel 1946, all'età di 70 anni, mentre lavorava in laboratorio.

Nel corso della sua lunga carriera, oltre al campo della termodinamica chimica Lewis ha contribuito in maniera eccezionale anche ad altri ambiti della chimica: la teoria del legame ed il relativo concetto di doppietto elettronico, la formulazione della teoria elettronica degli acidi e delle basi, l'isolamento del deuterio, lo studio della fosforescenza e dello stato di tripletto. Ciononostante, i suoi incredibili risultati non vennero mai reputati meritevoli del Premio Nobel [14].

Al confronto di Lewis, la figura di Merle Randall (1888-1950) appare decisamente minore [13, 32]. Nato nel 1888 in Missouri, conseguì il Ph.D. al MIT nel 1912, sotto la supervisione di Lewis. Fu questo l'inizio di una lunghissima collaborazione che durò per tutto il resto della sua carriera accademica. In quello stesso anno seguì il suo maestro e si trasferì anche lui a Berkeley.

A molti il contributo di Randall a "thermodynamics" appare secondario. Alcuni si spingono a pensare che la sua funzione fu poco più che quella di assistere Lewis nella stesura, scrivendo sotto la sua dettatura [13]. Ciononostante, Randall diede alle stampe anche un altro libro di testo [28], che però di certo non ebbe un successo comparabile [31, 32].

IL PROGETTO EDITORIALE

Thermodynamics and the free energy of chemical substances può essere considerato il coronamento della lunga attività di ricerca di Lewis nel campo della termodinamica chimica, cominciata quasi un quarto di secolo prima.

1. Il volume

La prima edizione fu pubblicata nel 1923 dall'editore McGraw-Hill, che allora esisteva da soli 14 anni. È rilegata con una sobria copertina verde scuro in cui il titolo e il nome degli autori sono riportati sul dorso in eleganti caratteri dorati, su fondo nero. Questa veste editoriale diventerà poi il segno distintivo della collana «*International Chemical Series*».

Il volume è abbastanza maneggevole, con misure piuttosto contenute: 21,5 cm per 14 cm per 3,2 cm. Esso consta complessivamente di 653 pagine più 23 pagine con numeri romani che oltre al titolo, le informazioni generali dell'editore e l'indice, contengono anche cinque pagine di prefazione da parte degli autori.

Il contenuto è distribuito in ben 42 capitoli e quattro appendici. Ne consegue che non sono capitoli particolarmente lunghi: pochi superano le 20 pagine e la maggior parte hanno lunghezze comprese fra 10 e 15 pagine. Il testo è arricchito da 60 figure, 104 tabelle e quasi 800 equazioni (considerando solo quelle numerate).

Le prime tre appendici riportano alcuni dati di impiego pratico. La quarta appendice, invece, riporta i riferimenti bibliografici di ben 55 articoli degli autori. Il primo è del 1899, l'ultimo del 1922. Lewis non compare solamente in tre lavori. Randall, invece, compare solamente in 13 lavori, e in 10 di questi come secondo autore, dopo Lewis.

2. L'origine del progetto

Il contenuto della appendice IV mostra con chiarezza la stretta connessione fra questo libro e il lavoro di ricerca di Lewis. Infatti, nella prefazione gli autori spiegano chiaramente che il loro iniziale intendimento non era quello di scrivere un manuale sulla termodinamica ma bensì di creare una raccolta di dati di energia libera e altre grandezze ad essa collegate per diverse classi di composti¹:

«We [originally] proposed merely to collect [...] the data which we have obtained [...] pertaining to the great problem of chemical affinity».

Tuttavia, ben presto si erano resi conto che per avere una visione più completa e approfondita, sarebbe stato necessario includere anche una descrizione dei metodi impiegati per ottenere tali dati. Molti dei quali erano stati sviluppati nel corso degli anni proprio da Lewis e i suoi collaboratori:

¹ *Thermodynamics* (1923), pag. VIII.

«But then we were convinced that mere reference tables would hardly render full service without some description of the methods by which they were obtained. The development of these methods [...] has occupied the greater part of our time for many years».

Infine, essi valutarono che per impiegare questi metodi era necessaria una comprensione approfondita dei principi alla base della termodinamica:

«Finally, these methods themselves require a fuller understanding of the underlying principles of thermodynamics than most elementary treatises afford. Indeed few books on thermodynamics touch upon the thermodynamic properties of solutions, a subject which we have regarded as of the utmost importance to any adequate treatment of thermodynamic chemistry».

La sequenza degli argomenti nel testo segue questa ideazione, ma in modo speculare:

- i capitoli I-XXI contengono gli argomenti fondanti della termodinamica, in particolare i principi e le loro applicazioni;
- i capitoli XXII-XXXII contengono la descrizione dei metodi messi a punto per la determinazione delle grandezze termodinamiche di interesse;
- i capitoli XXXIII-XLII riportano i calcoli sistematici delle energie libere di diverse classi di composti.

L'INTRECCIO DELLE DUE VISIONI DELLA TERMODINAMICA CHIMICA

Egli aveva una idea molto chiara della collocazione della sua ricerca all'interno del percorso che la termodinamica aveva cominciato molti decenni prima [20]. Nel capitolo I, che si può considerare per molti versi come una seconda prefazione, Lewis traccia un riepilogo di tale percorso e inquadra perfettamente il momento storico che questa disciplina stava vivendo nel contesto della chimica²:

- la prima fase era stata la posa delle basi della termodinamica e quindi, dall'inizio del XIX secolo fino al fondamentale lavoro di Rudolf Julius Emanuel Clausius (1822-1888) del 1865 [2].
- Nella seconda fase su queste solide basi fu costruito un vasto insieme di teoremi. Fra i molti contributi Lewis riconosceva in particolare quello di Jacobus Henricus van't Hoff (1852-1911) e soprattutto quello dato da

Josiah Willard Gibbs (1839-1903) [7, 8] pubblicata in due parti nel 1876 e nel 1878.

- La terza fase, in cui si trovava ad operare Lewis, era quella in cui era necessario sviluppare nuovi metodi più specifici e applicarli a particolari sistemi chimici. Era la fase in cui si poteva e si doveva accumulare e impiegare i dati ottenuti da questi metodi nello studio di sistemi chimici reali.

Lo sviluppo della termodinamica chimica fu caratterizzato da due approcci distinti: il primo muoveva dallo sviluppo delle idee della termodinamica nel contesto della fisica, cercando di ottenere risultati più generali, mentre l'altro si sforzava di risolvere problemi nell'ambito della chimica e prendeva le mosse dallo studio delle reazioni chimiche.

Il compito principale dei chimico-fisici della terza fase era quindi quello di cercare di superare tale dicotomia. Il titolo dell'articolo, «Outlines of a New System of Thermodynamic Chemistry», non celava per nulla lo scopo e l'ambizione di Lewis [20] a questo proposito [16]. In quegli anni lo sviluppo della termodinamica chimica fu caratterizzato da due approcci distinti: il primo muoveva dallo sviluppo delle idee della termodinamica nel contesto della fisica, cercando di ottenere risultati più generali, mentre l'altro si sforzava di risolvere problemi nell'ambito della chimica e prendeva le mosse dallo studio delle reazioni chimiche.

1. I termodinamici

Il primo approccio, impiegato da Gibbs e altri, si basava sulle equazioni fondamentali dell'entropia e del potenziale termodinamico [4, 17]. Gibbs trovò utile considerare l'energia e l'entropia non come grandezze isolate ma operare invece con varie combinazioni di queste grandezze e funzioni di stato come pressione e volume, dando il nome di *potenziale termodinamico* a varie di queste combinazioni.

Questo permise a Gibbs di espandere il campo di applicazione della termodinamica anche ai sistemi eterogenei e quindi anche ai problemi della chimica [3, 5, 16, 18]. La teoria di Gibbs fu considerata dalla comunità dei chimici troppo astratta e generale e quindi inadatta ad essere impiegata nella indagine sperimentale dei processi chimici. Anche la complessità matematica era un grande ostacolo. Infatti, aspetti della matematica più avanzati, come il calcolo integrale e differenziale erano considerati non necessari. Basti pensare che in quegli anni ad Harvard era possibile conseguire un Ph.D. in chimica senza aver mai affrontato un corso su questi argomenti [19].

² *Thermodynamics* (1923), pag. 5.

2. Gli *ionisti*

Il secondo approccio era quello degli *ionisti*, un gruppo di chimici europei, fra i quali bisogna ricordare, oltre a van't Hoff anche Svante August Arrhenius (1859-1927) e Wilhelm Ostwald (1853-1932). Le teorie della termodinamica chimica e i relativi metodi che essi svilupparono possono essere considerate un prodotto secondario della teoria delle soluzioni che includeva anche le idee della dissociazione ionica e della pressione osmotica. L'approccio scelto dagli *ionisti* era meno generale e rigoroso di quello di Gibbs, ma proprio per questo risultava più pragmatico e di facile applicazione da parte della comunità dei chimici. Si può far risalire l'origine di questo approccio al 1884 con la pubblicazione di *Étude de dynamique chimique* [10]. La termodinamica di van't Hoff ignorava del tutto l'entropia e non faceva uso del concetto di energia libera. Al suo posto egli introdusse una grandezza che chiamò *lavoro di affinità chimica* e, a partire da essa, riuscì a derivare molte importanti relazioni.

L'approccio di van't Hoff a volte lasciava a desiderare in quanto a rigore, ricorrendo molto all'intuito. Ciononostante, tale aspetto non diminuì il successo della termodinamica degli *ionisti*, grazie anche a un ponderoso manuale di chimica fisica pubblicato da van't Hoff alla fine del XIX secolo, che ebbe grande influenza nell'insegnamento [11]. Entro la fine del XIX secolo gli *ionisti* erano riusciti a unificare vari aspetti dello studio dei sistemi chimici prima considerati separati in una unica cornice teorica che fornì le basi per la nuova disciplina della Chimica Fisica che stava nascendo in quegli anni. Nel 1901, durante una serie di lezioni tenute a Chicago, van't Hoff si dissociava nettamente dall'approcci dei *termodinamici* e in particolare dall'applicazione di «abstract physical conceptions and mathematical functions, such as entropy, as is done by physicists like Gibbs, Planck, and Duhem» [12, 18].

Non si deve però esagerare la differenza tra i *termodinamici* e gli *ionisti*. Questi ultimi non negavano l'utilità della termodinamica. Piuttosto, avevano un approccio pragmatico sul modo in cui dovevano essere risolti i problemi della chimica fisica e ritenevano che quello usato dai *termodinamici* non fosse il più adatto [18].

3. La sintesi delle due visioni

Il successo dell'approccio degli *ionisti* non poteva però nascondere i limiti della loro trattazione. In particolare, le loro teorie non riuscivano a descrivere in modo soddisfacente le soluzioni concentrate e neppure a spie-

gare il comportamento di soluzioni di elettroliti forti che non sembravano obbedire alla legge delle diluizioni di Ostwald [19].

Lewis era ben conscio di questi limiti [21], ma al tempo stesso riteneva l'approccio fisico-matematico di Gibbs e Duhem eccessivamente complesso e poco adatto alla risoluzione dei problemi chimici. Per questo motivo si propose di percorrere una via che gli avrebbe permesso di riunire queste due visioni in una sola. Con grande acume, decise di preservare il lavoro fatto dagli *ionisti*, mantenendo la forma delle equazioni sviluppate per i sistemi ideali ma impiegando i nuovi concetti di *fugacità* e di *attività* [20] in modo da rendere queste equazioni *esatte* anche per sistemi reali. Così facendo, le due visioni venivano riconciliate. A partire da questo, era possibile intraprendere con efficacia il programma che lo avrebbe impegnato per buona parte della sua carriera [15]:

«*While I have flirted with many problems, I was for many years pretty loyal to the main task which I had set for myself, namely, to weave together the abstract equations of thermodynamics and the concrete data of chemistry into a single science*».

Grazie al suo lavoro, quando nel 1923 veniva pubblicato *Thermodynamics*, le astratte equazioni della termodinamica e i dati concreti della chimica era ormai strettamente intrecciate.

IL PERCORSO DI *THERMODYNAMICS* DAL SUO TEMPO FINO A OGGI

Il libro di Lewis e Randall venne riconosciuto immediatamente come un testo originale ed efficace. Una recensione su *Nature* del 1923 affermava che «no better account of modern chemical thermodynamics than appears in this book can be placed in the hands of advanced students» [30]. Lo stesso recensore ne ammirava anche lo stile e la prosa che reputava avere «an individual freshness which makes the volume much more readable and interesting than most treatises on the subjects».

Un'altra recensione, di due anni più tardi, su *Angewandte Chemie* riteneva il libro eccellente [6]. Pur rimarcando il successo dell'approccio *ionista* e le difficoltà presentate da quello più teorico, il recensore riconosceva che «la forma in cui gli autori hanno presentato questa visione offre, grazie alla sua chiarezza e relativa semplicità, un modo per ridurre al minimo queste difficoltà»³. La recen-

³ In originale: Aber die Form, in welche die Veirff. diese Betrachtungsweise gekleidet haben, bietet durch ihre Klarheit und

sione si chiudeva raccomandandone «con la massima insistenza» la lettura.

1. Il contesto

Per comprendere come il testo di Lewis e Randall sia stato innovativo, si può fare un confronto con i testi che lo hanno preceduto di qualche anno o che sono a lui contemporanei. Mentre la presentazione della parte di termochimica e del Primo Principio è piuttosto uniforme, quella che riguarda il secondo principio e la spontaneità mostra approcci abbastanza diversi [18]. La maggior parte dei testi, comunque, non cita neppure l'entropia e i rimanenti lo fanno quasi sempre dedicandovi poco più di un paragrafo [13]. Il testo *Thermodynamics and Chemistry* [27] uscito nel 1921 ebbe un discreto successo. Nel suo indice l'energia libera compare solo tre volte e solo una di queste fa riferimento all'energia Gibbs. La trattazione in *Thermodynamics*, invece, si basa senza incertezze sulla energia di Gibbs, che viene formulata espressamente in termini di entalpia ed entropia, alla quale vengono dedicati ben tre capitoli.

Anche la trattazione della termodinamica delle soluzioni rendeva il testo particolarmente all'avanguardia. Basti pensare che l'articolo che trattava della forza ionica era stato pubblicato da Lewis e Randall solo nel 1921 [22]. In aggiunta, nel testo viene fatto largo uso delle grandezze molari parziali e si estende il concetto di stato standard, a molte altre grandezze, oltre il potenziale standard dell'equazione di Nerst.

Infine, mentre nella tradizione della chimica, la connessione fra la teoria e i dati veniva fatta principalmente con i risultati della termochimica e con le applicazioni della regola delle fasi e lo studio dei relativi diagrammi di fase, in *Thermodynamics* questa connessione veniva fatta soprattutto attraverso dati di energia libera ed entropia che, come detto, costituivano la motivazione originaria per la scrittura di *Thermodynamics*.

Il libro era rivolto ad una ampia platea di possibili lettori. Lo scopo dichiarato dagli autori era⁴:

«to lead the beginner through the intricacies of thermodynamic theory and to guide the experienced investigator to the extreme limits now set by existing methods and data».

Precisando però che presso la *University of California*, dove loro insegnavano, la maggior parte del mate-

riale trattato nel libro veniva affrontato già all'ultimo anno del triennio.

Chi si accingeva ad affrontare lo studio, doveva però avere ben presente che le conoscenze matematiche erano ormai irrinunciabili. Per questo motivo, al capitolo III veniva riportato un veloce sunto dei metodi matematici impiegati, prestando particolare attenzione alle derivate parziali.

2. L'eredità

Nel 1927 apparve una traduzione tedesca [23] ed è possibile che sia esistita anche una traduzione russa non autorizzata [13]. Il successo e la modernità di *Thermodynamics* fecero sì che la sua prima edizione rimanesse disponibile per quasi quaranta anni. Nel 1961, ben dopo la morte di entrambi gli autori, McGraw-Hill decise di pubblicare una seconda edizione [25], aggiornata, curata da Kenneth S. Pitzer (1914-1997) e Leo Brewer (1919-2005), entrambi docenti della *University of California* a Berkeley. Di questa esiste anche una traduzione italiana [24].

Nella loro prefazione essi mostrano grande considerazione per la prima edizione, alla quale si riferiscono spesso con il termine «*masterpiece*». Rispetto alla prima edizione, quella del 1961 tratta in modo più completo ed approfondito la termodinamica statistica e amplia la trattazione della termodinamica delle superfici. I due nuovi autori decisero di rimuovere la parte finale del testo originale: le raccolte di dati di energia libera ed entropia che non ritenevano più necessari. Una recensione sul *Journal of Chemical Education*, riconoscendo che:

«no book has ever approached Lewis and Randall in getting down to the practical chemical use of thermodynamics»,

al tempo stesso lodava molto la nuova edizione concludendo che:

«The book will undoubtedly resume its place as a constant guide and reference for chemists using thermodynamics in their research, and as a textbook and reference for classes in the application of thermodynamics to chemistry».

Al di là della sua lunga storia editoriale, e quindi del suo impiego diretto come libro di testo da parte di generazione di studenti, i contenuti e l'impostazione generale di *Thermodynamics* ha continuato a essere presente nella formazione di molte altre generazioni di studenti, fino ad arrivare ai giorni nostri. Un confronto con un moder-

verhältnismäßige Einfachheit den Weg, diese Schwierigkeiten auf ein Mindestmaß zurückzuführen.

⁴ *Thermodynamics* (1923), pag. VIII.

no testo di Chimica Fisica, come può essere l'ultima edizione di Atkin's Physical Chemistry [1] mostra chiaramente che, al di là del posizionamento di alcuni argomenti, gli indici della parte di termodinamica classica si sovrappongono molto bene con quelli del testo di Lewis e Randall del 1923. Anche il linguaggio, la notazione, le dimostrazioni, sono molto simili. Uno studente di oggi non avrebbe alcuna difficoltà a ritrovare la chimica fisica appresa sul testo di Atkins nella lettura di *Thermodynamics*. È solo l'apparato grafico a tradire la distanza fra i due testi. Questo non dovrebbe sorprenderci più di tanto, gli autori di chimica fisica di oggi sono stati anche loro educati nel contesto delle idee di Lewis.

L'impatto della visione è stato così ampio che siamo giustificati nel caratterizzare l'approccio correntemente impiegato dalla comunità dei chimici come la formulazione di Gibbs-Lewis della termodinamica chimica [13].

CONCLUSIONI

Questa breve trattazione ha cercato di mostrare come grazie a *Thermodynamics and the free energy of chemical substances*, le idee e la visione di Lewis sono transitate nella cultura condivisa dai chimici di tutto il mondo. In questo modo è stato possibile superare la dicotomia fra due visioni della termodinamica chimica che, seppur non irrimediabilmente distanti, erano sembrate per un certo tempo inconciliabili.

Grazie al lavoro di ricerca di Lewis, ma anche grazie alla sua capacità di trasmettere in modo chiaro, elegante ed efficace le idee alla base di tale lavoro, la termodinamica di Gibbs è stata introdotta nella comunità dei chimici con il risalto che meritava, occupando un posto centrale che da allora non ha mai più lasciato.

La prefazione di *Thermodynamics*, che comincia parlando delle cattedrali della conoscenza, termina con una considerazione⁵:

«If during the course of the book we help disclose to the student some of the beauty and simplicity of the thermodynamic method, if we convince a few practical chemists of the extreme practicality of the results of thermodynamic calculations, if we contribute in some measure toward making chemistry an exact science, our task is rewarded».

Possiamo affermare con certezza che il loro compito è stato immensamente ricompensato.

BIBLIOGRAFIA

- [1] ATKINS, Peter, Julio DE PAULA, James KEELER, Atkins Physical Chemistry, 12th ed., Oxford University Press, Oxford, 2023.
- [2] CLAUSIUS, Ueber verschiedene für die Anwendung bequeme Formen der Hauptgleichungen der mechanischen Wärmetheorie, *Annalen Der Physik*. 201 (1865) 353-400.
- [3] DAIS Photis, The double transfer of thermodynamics: From physics to chemistry and from Europe to America, *Studies in History and Philosophy of Science Part A*. 77 (2019) 54-63.
- [4] DAIS Photis, Impact of Gibbs' and Duhem's approaches to thermodynamics on the development of chemical thermodynamics, *Archive for History of Exact Sciences*. 75 (2021) 1-74.
- [5] DUHEM Pierre Maurice Marie, Le potentiel thermodynamique et ses applications à la mécanique chimique et à l'étude des phénomènes électriques, A. Hermann, Paris, 1886.
- [6] FOERSTER, Thermodynamics and the Free Energy of Chemical Substances. Von G.N. Lewis u. M. Randall. McGraw-Hill Book Company. New York 1923, *Angewandte Chemie*. 38 (1925) 159-161.
- [7] GIBBS Josiah Willard, on the equilibrium of heterogeneous substances, *trans. Conn. Acad. Arts Sci.* 3 (1876) 108-248.
- [8] GIBBS Josiah Willard, On the equilibrium of heterogeneous substances, *Trans. Conn. Acad. Arts Sci.* 3 (1878) 343-524.
- [9] HILDEBRAND Joel H., Biographical Memoir of Gilbert Newton Lewis, 1875-1946, in: *Biographical Memoirs: Volume 55*, The National Academies Press, Washington, DC, 1985: pp. 208-235.
- [10] VAN'T HOFF Jacobus Henricus, *Études de dynamique chimique*, Frederik Muller & Co., Amsterdam, 1884.
- [11] VAN'T HOFF Jacobus Henricus, *Vorlesungen über theoretische und physikalische Chemie*, Friedrich Vieweg und Sohn, Braunschweig, 1898.
- [12] VAN'T HOFF Jacobus Henricus, *Physical Chemistry in the Service of the Sciences*, University of Chicago Press, Chicago, 1903.
- [13] JENSEN William B., The Quantification of 20th-Century Chemical Thermodynamics. A Tribute to "Thermodynamics and the Free Energy of Chemical Substances", (2005).
- [14] JENSEN William B., The Mystery of G.N. Lewis's Missing Nobel Prize, in: *The Posthumous Nobel Prize in Chemistry. Volume 1. Correcting the Errors and Oversights of the Nobel Prize Committee*, American Chemical Society, 2017: pp. 107-120.
- [15] JOLLY William L., *From Retorts to Lasers: The Story of Chemistry at Berkeley*, College of Chemistry, University of California, Berkeley, California., 1987.
- [16] KIPNIS A., Early Chemical Thermodynamics: Its Duality Embodied in Van't Hoff and Gibbs., in: W.J. Hornix, S.H.W.M. Mannaerts (Eds.), *Van't Hoff and the Emergence of Chemical Thermodynamics: Centennial of the First Nobel Prize for Chemistry, 1901-2001*, Delft University Press, Delft, 2001: pp. 212-242.
- [17] KLEIN Martin J., The Physics of J. Willard Gibbs in his Time, *Physics Today*. 43 (1990) 40-48.
- [18] KRAGH Helge, Stephen J. WEININGER, Sooner Silence than Confusion: The Tortuous Entry of Entropy into Chemistry, *Historical Studies in the Physical and Biological Sciences*. 27 (1996) 91-130.

⁵ *Thermodynamics* (1923), pag. xi.

- [19] LAIDLER Keith Jaems, *The World of Physical Chemistry*, Reprint edizione, New Publisher, Oxford; New York, 1995.
- [20] LEWIS Gilbert Newton, *Outlines of a New System of Thermodynamic Chemistry*, *Proceedings of the American Academy of Arts and Sciences*. 43 (1907) 259-293.
- [21] LEWIS Gilbert Newton, *The Use and Abuse of the Ionic Theory*, *Science*. 30 (1909) 1-6.
- [22] LEWIS Gilbert Newton, Merle RANDALL, *The Activity Coefficient Of Strong Electrolytes*, *J. Am. Chem. Soc.* 43 (1921) 1112-1154.
- [23] LEWIS Gilbert Newton, Merle RANDALL, *Thermodynamik und die Freie Energie Chemischer Substanzen*, Springer, Wien, 1927.
- [24] LEWIS Gilbert Newton, Merle RANDALL, *Termodinamica*, Leonardo, 1970.
- [25] LEWIS Gilbert Newton, Merle RANDALL, L. Brewer, K.S. Pitzer, *Thermodynamics*, McGraw-Hill, New York, 1961.
- [26] LEWIS Gilbert Newton, Merle RANDALL, *Thermodynamics and the free energy of chemical substances*, McGraw & Hill, New York, 1923.
- [27] F.H. MacDougall, *Thermodynamics and chemistry*, J. Wiley, New York, 1921.
- [28] RANDALL Merle, Lenona E. YOUNG, *Elementary Physical Chemistry*, Randall and Sons, 1942.
- [29] SERVOS, John W., *Physical chemistry from Ostwald to Pauling: the making of a science in America*, Princeton, N.J.: Princeton University Press, 1990.
- [30] *Thermodynamics and the Free Energy of Chemical Substances Theoretical Chemistry from the Standpoint of Avogadro's Rule and Thermodynamics*, *Nature*. 112 (1923) 272-273.
- [31] Allen V. Astin: A Turning Point for the National Bureau of Standards, NIST. (2010) <https://www.nist.gov/director/nb-snist-culture-excellence/allen-v-astin-turning-point-national-bureau-standards>.
- [32] University of California: In Memoriam, 1950, (n.d.). <http://texts.cdlib.org/view?docId=hb9g5008vb;NAAN=13030&doc.view=frames&chunk.id=div00007&toc.depth=1&toc.id=&brand=oac4>