

▶ 前沿交叉研判



分子自旋科学与技术 前沿交叉研判研究报告

分子自旋科学与技术前沿交叉研判研究 项目组

国家自然科学基金委与中国科学院联合资助

2024

报告撰写组

高松：中山大学、华南理工大学、北京大学

蒋尚达：华南理工大学

王焯欣：粤港澳大湾区量子科学中心

张俊龙：北京大学

周礼楠：华南理工大学

宁莹莹：华南理工大学

摘要

分子自旋科学与技术研究是研究分子中的电子自旋，并探索其在物理、化学、生物、材料、信息等领域中应用的前沿交叉领域，在未来的科技创新中将起到至关重要的作用，相关研究具有交叉性、前沿性和广泛的应用前景。本报告介绍了分子自旋科学技术的战略价值以及国内外研究发展现状和趋势，凝练了该领域的关键科学问题和技术难题，并对我国在该领域的发展给出了建议。

Abstract

Molecular spin science and technology has emerged as an interdisciplinary field focusing on electron spins in molecules and related applications in physics, chemistry, biology, materials science, and information science. It will play a crucial role in technological innovations. The chemistry of spins is deeply related to the essence of chemical bonds, chemical catalysis, enzyme catalysis, optical and electromagnetic properties, quantum computation and quantum precision measurements. The related research is intersectional, cutting-edge and has a wide range of application prospects. This report introduces the strategic value of science and technology related to molecular spins, analyses the current status and trend in relative research domestically and internationally, extracts key scientific questions and technological difficulties in the field, and provides suggestions on the development of the field in China.

I 目录

摘要	I
Abstract	II
第一章 分子自旋科学与技术的战略价值	1
第二章 分子自旋科学与技术的关键科学问题	4
1. 如何在磁性分子中实现高效的自旋极化?	4
2. 分子自旋与分子手性有何关系?	5
3. 如何在分子体系中实现磁电耦合?	6
4. 如何准确地读出单分子自旋信号?	7
第三章 我国及国际的研究基础与条件	9
1. 化学反应过程中的自旋效应	9
2. 分子材料的自旋效应	10
3. 分子自旋材料新物态	13
4. 分子自旋诊疗药物	14
5. 自旋化学理论计算	15
第四章 发展思路与政策建议	17
致谢	20
参考文献	21

第一章 分子自旋科学与技术的战略价值

人类对物质世界的认知，从 20 世纪初开始得到了长足的飞跃，随着卢瑟福、汤姆森、康普顿等科学家的重要发现，人们认识到分子和原子是构成物质、并保持物质性质的基本单元，而原子则由原子核和电子构成。原子核和电子的基本属性包括质量、电荷和自旋。20 世纪以来的科技进步无一不是围绕着这三种基本属性展开、发展，并实现飞跃，特别是在量子力学、现代化学等框架建立后的一百多年间，对原子核与电子的电荷和自旋的认知直接影响了人类科技的发展进程，高温超导、磁阻效应、衍射技术、核磁共振、霍尔效应家族等当代核心科技都以电荷或自旋为研究对象，获得诺贝尔奖十余项，涵盖了物理、化学、生命科学等多个学科，因此对原子、分子的电荷及自旋行为的研究，在当代科技发展中占据了核心地位。

分子自旋科学与技术是研究分子中的电子自旋，并探索其在物理、化学、生物、材料、信息等领域中应用的前沿交叉领域，在未来的科技创新中将起到至关重要的作用，相关研究具有交叉性、前沿性和广泛的应用前景。2023 年高松院士承担了由中国科学院和国家自然科学基金委员会联合资助的“分子自旋科学与技术”前沿交叉研判研究项目，并开展了系列研讨会，积极推动以分子自旋效应为核心的多学科交叉融合，促进颠覆性原始创新，更好地支撑国家基础交叉科学研究并强化化学合成、磁性材料、量子信息和分子诊疗等原创性、前瞻性科技攻关。

自旋是电子的重要内禀属性，单电子的自旋为 $S = 1/2$ ，其具有两个自旋微观态 $M_s = \pm 1/2$ ，当化学分子具有一个或多个未成对电子时，依据分子轨道中电子的排布方式，其基态自旋为整数或半整数 S ，相应的也具有 $2S+1$ 个自旋微观态 M_s 。电子的自旋特性也是产生自旋角动量的直接原因，与自旋态 S 和自旋微观态 M_s 一样，自旋角动量及其分量也表现出量子化特性。通常原子或分子的自旋角动量会与电子的空间轨道运动发生相互作用，产生自旋-轨道耦合效应，该效应在分子自旋科技的研究中起到至关重要的作用。

传统的化学研究主要关注分子的几何构型、位阻效应、电荷分布等因素对物质物理和化学性质的影响，以及分子反应性中的产物选择、反应速率、手性控制等关键指标的调控方法。顺磁性分子中的电子自旋为化学分子性质和化学反应性研究提供了全新的自由度，在目前的基础研究和应用基础研究中还较为少见，也是国际

化学前沿研究中的热点和难点。许多重要化学反应和催化过程的反应中间体涉及开壳层配合物或有机自由基，如催化合成、受控自由基聚合等，电子自旋态很可能决定了反应的速率及选择性等，因此，化学反应过程中可能存在的自旋效应将催生全新的高效催化剂、合成方法和反应路径。

自旋一直以来是物理学研究的主题之一，但物理学家关注的自旋载体通常集中在较为简单的无机物、晶体缺陷或原子单质等有限的体系，化学分子作为电子自旋的有效载体，一方面是目前唯一一种在大规模制备的基础上能表现出原子级均一性的材料，这一优势不但方便了人们从分子原子层面理解宏观磁学现象，也为磁性材料的设计和应用提供了坚实的物质基础；另一方面化学分子具有显著的可设计性，通过化学设计合成可以调控自旋载体的量子行为，这为理解和操控微观量子特性提供了便利。以自旋电子学和量子信息科技为代表的新一代信息处理技术的发展高度依赖于自旋材料的研发，分子基多铁材料、双极磁性半导体、分子基量子比特等诸多分子自旋材料是经典和量子信息处理技术的重要物质载体和基础。

近 20 年以来，化学与生物的融合已经难分彼此，但化学与物理，生物与物理的融合尚有更大的空间，这类融合可以帮助我们突破化学反应、化学催化、生命过程中的自旋机制等难题。分子自旋状态与生命体的能量转移和电子质子耦合转移等众多化学过程和生理功能密切相关，利用和调控分子的自旋状态，有助于理解生命科学中与自旋和磁效应有关的现象，实现对生命过程的检测、调控和干预，开发新型的自主知识产权医学诊断和治疗药物，以至于形成生物医药领域的未来产业。

分子自旋科技首先是面向世界科技前沿的基础研究。在基础研究方面，物理领域中基于自旋的新型电子物态和拓扑物态是这些年的研究热点，化学领域中通过自旋以及磁场调控化学反应将颠覆目前的化学合成和催化理论，在生命科学领域中光合作用、候鸟导航都与自旋相关。因此深入开展与分子自旋科技相关的研究，在物理、化学、生命、材料、信息等基础学科发展中可以促进学科交叉并诱导产生原始创新。

更重要的是，分子自旋科技的相关研究成果还有潜力应用于产业转化，实现产业创新升级。新型的自旋电子材料与器件可以突破摩尔定律的瓶颈；基于自旋的量子信息科技也是近十年来的热门课题；最近发展的动力学核极化方法是一种全新的核磁共振技术，可能会直接引起医疗影像学的革命。自旋科学与技术的发展面向

国家战略需求，在关键技术上开辟新领域新赛道。

对分子自旋的研究，事实上是对分子中电子基本属性的深刻挖掘和协同攻关。这一领域一直以来都是国际上竞争激烈的研究方向，也是发达国家重点部署的科研领域。2023年由美国国家科学院、国家工程院、国家医学院共同发布了《发现化学和量子信息科学交叉研究机遇共识性报告》，特别强调了在亚原子、原子、分子和大分子尺度上进行化学和量子信息科学的交叉性研究的重要性和研究思路。

第二章 分子自旋科学与技术的关键科学问题

2023 年高松院士牵头组织了针对分子自旋科学与技术领域的交叉研判研究，梳理了以磁性分子为研究对象的新兴前沿领域及关键挑战。该研究开展了以“分子自旋与电的相互作用”、“分子自旋与光的相互作用”、“分子自旋与手性的内在关联”、“自旋弛豫现象”、“基于分子自旋的新物态”、“分子自旋生物医药”、“化学反应中的自旋效应”以及“光电自由基”等为主题的 8 次系列研讨会，参与研讨的专家包括化学、物理、生命、材料、医学等多个学科的一线研究人员 120 余人，其中包括高松、杜江峰、方维海、杨金龙、吴骊珠、刘买利、唐智勇、丁洪等 8 位中国科学院院士。经过长达近一年的文献调研和系列研讨，与会专家认为，随着分子自旋科学与技术的发展，在对磁性分子的性质研究及其应用方面，逐渐出现了一些新的值得探索的科学问题和技术难题，这些科学和技术问题往往在多个研究方向或应用场景中起到关键作用，也亟待科学家通过学科交叉、理论创新实现突破。

1. 如何在磁性分子中实现高效的自旋极化？

自旋极化是指分子的某一个自旋微观态有更多的布居，从而表现出净磁矩，因此自旋极化也被称为磁化。广义地说，磁性分子的自旋微观态在磁场中发生能级劈裂，由于玻耳兹曼布居差，总会表现出一定程度的自旋极化现象。但这种自旋极化往往不满足量子信息或分子自旋电子学的应用场景需求，人们追求的是在特定磁场和温度下更高的自旋极化度，甚至仅使特定的自旋微观态有布居，实现自旋纯态。

在量子信息科技发展的早期，就有科学家建议通过低温和强磁场来实现自旋极化，使磁性分子主要布居在最低能量的微观态上，这就可以有效解决核磁量子计算较低的极化度以及混合态问题，虽然这种基于玻耳兹曼分布的原理实现自旋极化的方案具有普适性，但其极化效率往往较低。近年来，以色列科学家 Naaman 发现了手性诱导的自旋选择效应（Chiral Induced Spin Selectivity, CISS）^[1]，即非极化电流通过抗磁的手性分子或手性结构时被诱导产生自旋极化电流，进而形成的类似自旋阀的效应，但该极化机制尚不清楚，极化效率也较低。在一些光化学和光物理的过程中，由于跃迁选律的限定，往往在自发辐射或弛豫过程中表现出自旋选择。因此，通过光泵浦技术可实现较高效率的自旋极化，该技术已经应用于原子钟、量子精密测量等领域。

发展高效的磁性分子体系自旋极化方法，首先是深刻认知并综合考量磁性分子的几何结构、电子结构、微观波函数的宇称与选律等的内在关联，并在此基础上将这种对构性关系的深入理解反哺于对物质性能的有效化学调控与物理操控，从而拓展目前物理学、信息科技普遍使用的固体缺陷、原子等有限的研究对象。更为重要的是，自旋极化技术也是众多自旋科技前沿领域的研究瓶颈，例如量子信息的初始化、微波激射技术的布居反转、自旋电子学所需的极化电流、新一代磁共振成像的动态核极化等，都需要通过有效的手段对磁性分子实现较高度度的自旋极化，方可实现以上变革性新技术的实际应用。

2. 分子自旋与分子手性有何关系？

从物理的角度看，自旋是时间反演对称性的破缺，而手性则是空间反演对称性的破缺，在化学反应的自旋效应对分子的自旋操控过程中，角动量在分子和光等不同载体、自旋和轨道等不同自由度间进行传递。在科学实践中，这指向了对电子自旋、光偏振态和分子手性三者间相互作用的综合考察、操控，以及机理研究和应用探索。法拉第旋光效应描述了光物理过程中自旋微观态与光偏振态的耦合，圆偏振发光和手性旋光活性效应是光受到物质结构手性调节的现象。前述的 CISS 效应把物质的结构手性和自旋微观态直接关联起来，其本质仍然是角动量在传输电子和手性分子之间的传递。

结构手性不但为实现磁电耦合提供基本平台，手性诱导自旋选择行为也意味着自旋和手性存在深刻的内在关联，因此以手性作为桥梁，把电荷与自旋这两种电子的基本属性关联起来，有可能实现自旋、电荷及手性三种重要的物理性质在分子体系中的完美统一。目前的瓶颈是人们对手性缺乏更为深刻、更为本质的认知，比如人们目前尚无法基于分子的结构手性判断发射或吸收的圆偏振态相关特性，根本原因是我们目前尚不清楚手性分子的角动量的具体表现形式。

深刻理解手性与自旋及电荷的内在关联，还可能对手性合成起到关键作用，在一些具有自旋效应的化学反应或催化过程中，通过高效自旋极化有可能诱导手性选择性，而这有可能解释生命体的手性起源问题。虽然在弱相互作用中宇称是不守恒的，但弱作用的能量和主导生命过程的电磁作用相比小了 11 个数量级，所以人们很难相信生命对手性的偏爱源自弱作用的宇称破缺。但从物理作用的量级角度

考虑，地磁场诱导的少量自旋极化完全可以通过化学反应的自旋效应诱导产生地球原初生命体的优势手性异构体。因此研究化学过程中的自旋效应，可能基于分子自旋的极化实现化学反应的手性选择性，并由此理解生命体的手性起源问题。

3. 如何在分子体系中实现磁电耦合？

作为电子的基本属性，电荷和自旋的宏观或微观表现形式往往是分别出现的，例如具有极性点群对称性的分子由于电子云的分布不均（空间对称性破缺）总会表现出电偶极矩，对于具有未成对电子的分子由于分子有净自旋（时间对称性破缺）总会表现出磁偶极矩。在一百余年的化学和物理研究中，这种电荷与自旋分别表现出电偶极矩和磁偶极矩这两种分子的基本物性的行为是较为常见的。早在 160 多年前，麦克斯韦就统一了电和磁，而通过分子工程设计，在分子固体中实现磁电耦合尚未有很好的实践方案，目前仅在铁酸铋等很少的一些无机氧化物铁电体中发现了磁电耦合现象。2011 年，高松院士首次在磁性分子固体中发现了弱铁磁有序和铁电有序共存现象^[2]，但这两种有序源自两种完全不同的机制，铁电序相变来自晶格中铵离子在不同温度下的无序-有序转变，弱铁磁序来自金属自旋中心间的自旋倾斜耦合作用，磁电两种相变发生的温度也有较大差异，因此在这种双重有序现象中并未观察到明显的磁电耦合，其主要原因是表现出磁偶极矩和电偶极矩的来源不同，即磁电不同源。中国科技大学杨金龙院士提出的双极磁性半导体（bipolar magnetic semiconductor）^[3]，可直接通过门电压调控载流子自旋极化方向。该类材料可不依赖于旋轨耦合实现磁电耦合效应，不必翻转材料的宏观磁矩，通过改变栅压即可实现翻转载流子自旋，且具有更高的以电控磁响应速度。

从物理本质来看，实现磁电耦合可以在分子固体中统一电和磁，帮助人们理解电荷和自旋这两种电子基本属性之间的内在关联，更为重要的是磁电耦合具有十分重要的应用场景。

首先，实现高效的自旋操控是自旋电子学等新一代信息技术的基本科学问题和关键技术挑战之一。相较于使用磁场操控自旋，电场的控制速度更快、更局域、能耗更低，因此利用铁磁-铁电分子材料中的磁电耦合，实现以电控磁，从而发展具有更高存储密度、更快计算速率、更低读写能耗的自旋电子学变革性新技术，这也是目前国际上信息科技和材料科学领域最为关注的研究重点之一。

其次，在大规模集成的量子计算中，必须对每一个量子比特进行可寻址的独立逻辑门操控，而由于磁场较为弥散，无法对多个量子比特进行规模化、高保真度的相干操控，因此实用化的固态自旋量子计算机必须以电控磁，即使用大量电门控器件实现对每一个自旋量子比特的局域化、高保真、高效率、低功耗操控。这也需要发展具有磁电耦合特性的自旋分子材料。

4. 如何准确地读出单分子自旋信号？

传统对分子自旋行为的研究主要是基于宏量磁性分子，所观测的物理量也是集体的“系综”平均行为。虽然这种研究方式可以加深人们对微观分子中电子运动规律的认识，但仍具有模糊性。这类研究虽然提供了丰富的备选体系和技术积累，但无法排除一个科学逻辑上的漏洞，即对系综分子自旋的研究，操控中的状态在本质上都是混合态，其行为并不能完全严谨地归结于其中的信息基本单元，即电子自旋磁量子态的量子本质。从微观的角度上我们无法判断，系综整体表现出的“量子”行为究竟是来自每个基元的量子特性的累加，还是仅仅来自经典子系综的表现效应。同时，基于量子信息材料制备的规模化、可寻址的器件，也必须是由多个单一基元通过受控的耦合连成特定结构得到。从科学本质和技术发展的角度，该领域都有必要走向对特定分子体系中单一自旋量子特性的研究。

近年来，随着实验精度和技术控制能力的不断提高，人们可以直接探测各类物理系统中单一量子态的特性，这方面研究及其与物理、信息、材料、能源的交叉融合，有可能引起重大的科学突破。单一分子量子态的读取和相干操控技术具有很大的难度和挑战性，这主要是因为单分子量子态的物理量信号通常很弱，必须有很高的测量精度才能准确检测，磁性分子量子态的相干时间往往较短，并且高度局域化，需要发展超高时空分辨的探测技术：实验技术上要求极高的能量分辨率（亚 meV）、时间分辨率（fs）和空间分辨率（亚 nm）。

目前对单分子的测量技术主要有电和光两种读出方案。其中基于分子断裂节^[4]和扫描隧道显微镜^[5]的策略都是将分子量子相干态的信息耦合进输运电流中，从而读出单分子量子态，但在这类方案中，传输电子会不可避免地干扰分子量子态，引起较为明显的量子退相干；目前通过光读出技术检测单分子的策略主要集中在表面等离子基元增强技术^[6,7]，直接探测单分子的发光或拉曼吸收，从而实现单

分子成像，但罕见使用该技术读出单分子量子叠加态的相干信息，主要是由于等离子基元较大的振荡电场会使被探测分子退相干；也有一些科学家通过将单一磁性分子与金刚石色心、超导腔等较为成熟的单自旋体系耦合^[8,9]，从而间接读取单分子量子态信息，但这类策略在样品制备、探测精度等方面都有极为严苛的要求。近年来，也有科学家提出可以基于自旋与光耦合的方式，通过读出分子发射的光子^[10]，读出分子自旋，但相关工作并未实现单分子自旋态的光读出。

第三章 我国及国际的研究基础与条件

分子自旋科学与技术的研究领域是在配位化学、自由基化学、化学催化、生物医学、半导体物理、量子信息、自旋电子学等多个学科领域的共同发展下涌现出来的、具有显著前沿性和交叉性的新兴领域。以下将从化学反应过程中的自旋效应、分子材料中的自旋效应、分子自旋材料中的新物态、分子自旋诊疗药物和分子自旋理论计算等 5 个方面介绍该领域在国际上和我国的发展现状与趋势。

1. 化学反应过程中的自旋效应

在化学反应过程中，自旋效应主要体现为反应物的自旋态 S 以及自旋微观态 M_s 发生变化时，引起化学反应路径、产物种类、产率以及化学反应速率等发生变化。在对化学反应过程自旋效应的研究中，最受人们关注的是自旋微观态 M_s 的行为。自旋微观态的能量通常会随着磁场的变化而发生改变，在一些自由基对参与的化学反应中，随着磁场的施加，自旋态 S 中自旋微观态 M_s 的能量变化甚至可以和其他自旋态 $S \pm 1$ 发生交叉，从而显著影响化学反应的进程^[11]；在光化学反应中，激发态的动力学过程也往往包含系间窜越等导致的自旋态 S 和微观态 M_s 的改变，因此光也是调控微观态的重要手段之一^[12]；在一些电催化过程中，使用磁性电极可以显著影响析氧反应和氧还原反应的效率，这主要是因为作为化学反应的反应物或产物，氧气的自旋态变化是影响反应速率和产率的关键^[13]。

以色列希伯来大学 Shaik 等研究铁血红素氧化反应机制时发现，活性 $\text{Fe}=\text{O}$ 物种在化学键活化过程中经历了自旋态转变，表现出明显的自旋加速效应^[14]。最近南开大学朱守非等发展了一系列基于邻菲罗啉配体的铁催化剂并将其用于多种不饱和烃转化反应，发现这些铁催化剂总是以中高自旋态促进反应并可以通过自旋态改变调节铁中心的电子云密度，使其可以同时加速氧化加成和还原消除这一对在电性需求上截然相反的基元反应，甚至可以通过自旋转变将反应引导到另一个势能面，改变反应的化学选择性^[15-18]。这些发现显示调节电子自旋态是提高铁配合物催化剂效率的一条有效途径，也是发展新型高效金属催化剂的关键，这显著不同于传统金属催化剂的设计思路，具有重要研究价值。除了配位场手段，人们可利用磁场对一些反应过程中孪生自由基对中间体电子自旋态的单-三重态布居进行重新调节，从而影响反应效率与选择性。牛津大学 Hore 等研究发现磁场对隐花色素

蛋白光化学过程中自由基对中间体自旋态的影响导致了鸟导航中的地磁感应^[19]，揭示了化学反应磁效应的重要生物功能。最新研究表明动物可能通过光敏色素辅基——黄素腺嘌呤二核苷酸（FAD）产生自由基对感应磁场，说明磁场调控光催化电子转移反应的重要性，可能成为磁场调节生物行为的“普适性”的理论基础和重要前提^[20]。北京大学张俊龙等发展了仿生光敏剂，利用金属影响系间窜越过程，调控三线态（基态）与光敏剂激发态的自旋相互作用，产生可用于生物诊疗活性的氧物种（ROS）^[21,22]。

化学过程中的自旋效应主要表现在动力学方面。在传统的化学反应和催化研究中，人们主要关注的是化学过程中的能量变化与传递。而有自旋参与的化学反应则还应考虑角动量的传递和守恒，反应物、催化剂、产物以及环境之间的角动量传递直接影响了反应进程。破坏角动量守恒的化学过程通常具有较低的化学反应速率。在自旋禁阻的化学过程中，自旋-轨道耦合效应通常起到至关重要的作用。从产物的种类和产率中都能观察到这一因素的影响。因此，研究化学过程中的自旋效应，通过磁场等手段调控化学反应中产物的种类和产率，也是自旋化学的重要研究目标。

2. 分子材料的自旋效应

自旋是材料产生磁矩的主要原因，因此对化学分子材料的磁性研究前沿，也多聚焦于其中的自旋效应。相关研究主要集中在分子基铁磁体、分子纳米磁体和分子量子信息材料等三方面。

（1）室温分子铁磁体。长期以来分子基磁性材料的研究热点是设计合成具有较高居里温度的分子基铁磁体和半导体，该类材料可以直接应用于自旋电子学和经典信息处理，但几十年来仅有少量室温分子铁磁体的相关报道。这主要是分子体系中自旋载体间的磁耦合较弱导致的。法国和美国科学家分别报道过类普鲁士蓝^[23]和 V-TCNE 室温铁磁体^[24]，其中自旋中心金属离子主要以混合价的形式存在，较高的居里温度可能源自大共轭配体以及混合价金属离子间的双交换作用共同导致。华南理工大学马於光院士通过在共轭有机自由基中定量氧化引入巡游电子，成功制备了有机铁磁半导体^[25]。中国科学技术大学杨金龙院士提出了利用共轭电子受体分子作为有机连接体，构建二维金属有机框架材料，从而实现室温有机亚铁磁

半导体的设想^[26]，最近法国科学家正是基于该设想，通过向共轭配体中注入巡游电子，合成了新型室温分子亚铁磁半导体^[27]。

此外，铁磁、铁电和铁弹等多铁性质在分子材料中的实现亦将推进室温分子铁磁体的直接应用。实现高效的自旋操控是自旋电子学的基本科学问题之一，利用铁磁-铁电分子材料中的磁电耦合，实现以电控磁，是达成该目标重要途径。北京大学高松院士首次报道了分子磁体中铁磁和铁电的共存现象，但并未发现显著的磁电耦合现象^[2,28]。中国科技大学杨金龙院士提出的双极磁性半导体，可直接通过门电压调控载流子自旋极化方向^[3,29]。该类材料可不依赖于旋轨耦合实现磁电耦合效应，不必翻转材料的宏观磁矩，通过改变栅压即可实现翻转载流子自旋，且具有更高的以电控磁响应速度。

目前分子铁磁体和分子铁电体的发展已较为成熟，但对二者共存且发生磁电耦合行为的分子材料的创制和研究相对薄弱。这主要因为目前的分子铁磁和铁电材料中磁电不同源，表现为相对独立的两种无序-有序相变行为，这不利于产生磁电耦合特性，限制了其在自旋电子学中的应用。因此，应当从强旋轨耦合及自旋-自旋反对称耦合的 Dzyaloshinskii - Moriya 相互作用的角度设计磁电同源的分子多铁材料。此外，现有的双极磁性半导体候选材料往往具有较低的居里温度，磁双稳态之间能垒较低、特性较差，且多为非本征的物理或化学修饰性材料，使用电控磁在实验上不易实现^[30]。此外，手性诱导自旋选择效应亦可应用于分子自旋电子学领域，但目前存在电流极化度较低、电流极化与手性分子结构的关联机制尚不清晰等主要困难^[31]。

(2) 分子纳米磁体。近 30 年前，意大利科学家 Gatteschi 率先发现了单分子磁体^[32]。这类金属团簇配合物分子可以表现出超顺磁行为，虽然没有磁相变，但可以在单分子尺度上表现出类似于铁磁体的磁滞行为。对于物理学家来说，单分子磁体背后的物理模型是清晰且难得的，单分子磁体表现出的单轴各向异性，为物理学家提出的模型提供了实物材料，一些理论设想可以在单分子磁体上进行验证，特别是在块体的单分子磁体中，在较低的温度下可以观测到磁矩的量子隧穿现象，这成为了宏观物体中观测到量子现象的范例，例如法国科学家在单分子磁体中观测到了几何相位的干涉现象^[33]。此外单分子磁体亦可在单分子尺度上构筑自旋阀等自旋电子学器件，为计算机小型化提供了物质基础^[34]。近十年来，为了进一步提升单

分子磁体的阻塞温度，人们转而研究设计合成仅含有一个金属离子的单分子磁体，从而更有效地控制单分子磁体的各向异性行为。北京大学高松院士开辟了金属有机单离子磁体领域^[35]，近年来国内外研究者已有工作实现了阻塞温度突破液氮温度的单离子磁体^[36]。

虽然分子纳米磁体近 30 年来已有长足进展，但在单分子自旋态操控、单分子自旋阀器件制备等领域仍需寻找通用普适的研究手段。

(3) 分子量子信息材料。近十年来，化学工作者注意到电子自旋作为量子信息载体的潜在价值，并致力于从分子工程的角度开发性能优良、具有竞争力的量子信息材料^[37-40]。在这方面，最直接的思路首先是合成带有电子自旋 $S=1/2$ 的二能级磁性分子，作为量子信息的基本单元——量子比特 (quantum bit, qubit)，并基于脉冲电子顺磁共振 (electron paramagnetic resonance, EPR) 技术进行操控。化学家合成的一些磁性分子在液氦到液氮的温度区间拥有微秒至毫秒量级的相干时间^[41-43]，足够允许相当复杂度的量子信息操控。然而，实用的量子信息载体，不仅需要长相干时间，还需要足够大的量子态空间作为信息处理的基础，以及可控的体系-环境相互作用作为量子态操控的手段。为解决这些问题，华南理工大学蒋尚达等研究了金属内嵌富勒烯分子等高自旋体系，探索了以单中心多能级体系替代多中心耦合体系构造高维量子态空间，进而完成特定量子信息操作的可能性^[44-46]，还利用稀土离子的强旋轨耦合与金属甲酸盐框架的分子铁电性，将电场作为操控手段引入量子信息材料的功能设计，展示了便于与现有技术整合以实现空间寻址的分子量子信息技术路线。

目前该领域的研究主要是在系综样品上进行的，操控中的量子态在本质上都是混合态而非纯态，其行为并不能严谨地归结于电子自旋的量子本质。微观上尚无法判断，系综整体表现出的“量子”行为究竟是来自每个基元的量子特性的累加，还是仅仅来自经典子系综的表观效应^[47]。同时，基于量子信息材料制备的规模化、可寻址的器件，也需要由多个单一基元通过受控的耦合连成特定结构得到^[37,48]。从科学概念和技术发展的角度，该领域需要走向对单一分子自旋量子特性的研究和利用^[49]。

3. 分子自旋材料新物态

分子基自旋晶格可以通过合理的晶体工程学策略实现精准的结构拓扑以及格点自旋态调控，这也是磁性分子材料的重要优势。因此通过设计调控分子基自旋晶格，可以预测、合成如蜂巢、Kagome、K₄等具备自旋阻挫性质的结构。对这些体系中可能产生的量子自旋液体的激发行为的研究将为探索高温超导机制、新型准粒子、非阿贝尔任意子激发以及量子编织等凝聚态物理前沿重大科学问题提供物质基础^[50]。日本科学家长期以来对电荷转移复合物 κ -(ET)₂Cu₂(CN)₃、EtMe₃Sb[Pd(dmit)₂]₂ 等材料的研究揭示了分子基三角格子体系中的量子自旋液体行为以及相关的量子涌现现象^[51,52]。近年来，中国科学院化学所朱道本院士^[53]以及日本名古屋大学 Awaga 教授^[54]的研究进一步证实了在具备特殊晶体拓扑结构的金属有机框架化合物中存在基于 Kagome 格子的量子自旋液体行为以及衍生出的独特量子相，在具备高度设计性的分子基材料和凝聚态量子磁学之间构筑了坚实的桥梁。

由于理论预测在基于蜂巢格子与强各向异性自旋格点的 Kitaev 自旋液体材料中存在马约拉纳零能模以及 Z₂ 涡流激发态，从而具有可被应用于量子拓扑计算的潜质，这一类材料被认为具备突出的物理学新颖性和应用前景，但在传统的无机盐或陶瓷类材料中，寻找 Kitaev 自旋液体极其困难。因此，探寻 Kitaev 或近似 Kitaev 分子材料的合成策略是分子自旋阻挫材料方面的重要课题。与此同时，由于较多的新型分子自旋阻挫材料具备二维结构特性，对这一类材料的剥离，薄膜器件化和表面技术表征可以在不具备高质量单晶，不使用大科学仪器的前提下直接观测潜在的量子磁激发态，从而为凝聚态磁性理论提供重要的支持和佐证。

此外，低维磁性体系与超导体系的异质结构是实现人工拓扑超导体的重要途径。受限于磁性原子在超导体表面的生长动力学，在超导体表面制备合适的磁性纳米结构非常困难。而分子基自旋晶格则有望在超导体表面构建不同维度的磁性有序结构，为探索人工超导体提供重要途径，进而以新的物态实现拓扑超导。研究磁性分子与周围环境中的相互作用是揭示新的量子现象和发现新的量子物态的重要途径。磁性金属离子是自旋的良好载体，其自旋中心不仅与配位体形成化学键而变得相当稳定，而且配位体间相互作用使得其有自组装特性，可以构建规则的磁性晶格阵列。利用磁性晶格与单晶衬底的相互作用，则可以实现表面近藤晶格，从而人

工模拟复杂的重费米子体系，开展近藤空穴研究等重要课题。

运用单分子自旋与传导电子、超导库伯对、磁性衬底等耦合的自旋态，精准操控相互作用，可揭示单分子尺度的多体关联物理机制，实现基于单分子尺度的人工量子系统设计。分子自旋与常规传导电子和超导库伯对的相互作用目前已经有了一些研究和进展。但是分子自旋中心之间在空间上分开，难以实现自旋中心的交换耦合。这需要通过研究环境电子结构，如传导电子、二维超导自旋激发的长程衰减性质等，为媒介或自由基自旋组装特性的实现探索基于表面分子耦合的调控方法。

4. 分子自旋诊疗药物

基于分子自旋性质的金属诊断药物早已广泛应用于临床，如核磁共振成像造影剂。核磁共振造影技术在临床诊断中具有无创、实时、高精度等重要优点。生命体中绝大多数物质在分子层面电子均已成对，不表现电子磁矩，因此通过在特定组织中富集顺磁分子造影剂即可大幅度缩短该组织中质子的核自旋弛豫时间，进而通过多次重复该组织中的质子反转弛豫过程，增强该部位的核磁共振信号。目前临床主要使用的造影剂是基于顺磁离子 Gd^{3+} 的螯合物 $Gd-DTPA$ 和 $Gd-DOTA$ ^[55]。 Gd^{3+} 与其他元素相比，未成对电子数目最多，电子磁矩的诱导作用最强，有较大的优势。但是 Gd^{3+} 在体内沉积引起的毒性以及非特异性仍然是临床亟待解决的问题。利用自旋化学，发展新型的 Mn , Fe 造影剂以及靶向造影剂，有助于提高磁共振造影剂作用的特异性和临床的安全性。

精准调控激发态中金属到配体的电荷转移 (MLCT) 或 $d-d^*$ 跃迁能级是理性设计过渡金属分子光敏剂，开发光热溶栓治疗药物的基础。张俊龙课题组以镍配合物为例，发现 3d 金属-碳键的形成，有利于强 σ 电子给体增大配位场分裂能，显著延长过渡金属配合物的激发态寿命，调控激发态的布居和耗散途径，实现发光与光热（声）等功能的切换。激发态光谱结合理论计算表明，由于 d 电子配位场分裂能较小，低能三重态具有金属到配体的电荷转移 (MLCT) 过程，金属-碳键的激发态伸缩振动成为激发态弛豫重要的非辐射跃迁通道。在体外和体内的光热溶栓实验中，展示了该类化合物在生物医学中的“概念性验证”应用^[56]。

此外，疾病过程中通常涉及多种激发态物种的重新分布和转移，这与分子的自旋状态和量子迁移行为密切相关。利用化学小分子或者生物大分子药物可以有效

实现体内与分子自旋状态相关的活性分子干预，参与各种复杂的疾病相关信号的传导途径，通过多效性相互作用开发高效的新型治疗药物。结合磁共振成像手段，可实现疾病靶点的可视化，进行药物药效监控，这将服务于新型自旋药物的设计，缩短治疗药物的研发周期。

5. 自旋化学理论计算

理论与计算工具在认识、理解和指导自旋化学相关研究方面的重要作用是不可替代的。北京师范大学方维海院士对金属配合物参与的光催化反应开展了多组态计算，研究自旋翻转对反应动力学的关键作用，提出了新的能量转移和电子转移机制^[57-59]。

随着实验技术的发展，自旋化学呈现出复杂化和多样化的发展趋势，其理论计算面临更多挑战。例如，密度泛函理论方法的计算量适合自旋化学涉及的大多数体系，但计算结果严重依赖于泛函的选择，可信度时高时低，亟需在多组态水平建立相应的误差评估方案^[60]。又如，当前普遍使用的过渡态理论仅对绝热势能面有效，而自旋化学涉及电子电荷、自旋、原子核运动、外磁场等不同自由度间的耦合，亟需将计算的重心从静态结构转向非绝热、非平衡的动力学过程，并将化学物理的相关理论成果从模型拓展到真实分子体系，发展新的动力学计算方法^[61-65]。

分子自旋科学与技术是目前国际上竞争激烈的研究方向，也是发达国家重点部署的科研领域。例如，欧盟针对自旋电子学的基础和产业化研究，从2021年起开展长期资助，总资助额度达3.1亿欧元。2016年美国国土安全部和国家科学技术委员会联合出版的《先进量子信息科学报告》中明确了“作为美国在科学领导、国家安全和经济竞争力的重要组成部分，讲量子信息科学确定为联邦协调和资助的优先事项”，并重点强调了基于磁性分子实现量子计算和对磁性分子量子态进行精密测量的研究领域。2023年由美国国家科学院、国家工程院、国家医学院共同发布了《发现化学和量子信息科学交叉研究机遇共识性报告》，特别强调了在亚原子、原子、分子和大分子尺度上进行化学和量子信息科学的交叉性研究。

值得注意的是，在强调经费投入和平台建设对化学和量子信息科学的交叉研究之外，美国同时十分重视对该领域的人才培养。相关专家在调研了该国量子信息科技行业和初高等化学教育的现状后发现，大多数传统的本科化学教育几乎不涉

及自旋科技，多数学生是在物理、材料等其他院系，或研究生课程的教育中接触到相关知识，限制化学研究人员开展自旋科技相关研究的主要因素是量子力学的原理没有纳入传统的化学教育中。因此美国国家科学院、国家工程院、国家医学院共同建议丰富从初等到高等教育全链条的关于量子力学和化学交叉的课程资源，并鼓励教育工作者和相关企业加强科普活动，以提升学生接触到化学和量子科学交叉的概念和技能。

第四章 发展思路与政策建议

分子自旋科学与技术是一个具有多领域辐射性质的新兴学科领域，其在化学键本质、涉及自旋过程的化学催化、光电磁多功能材料、自旋酶催化、量子计算和量子精密测量等多个领域中都起到重要作用。分子自旋科学与技术的相关研究和应用如果落后，会导致我国在基础化学、新化工、新材料、生命科学、量子信息科技等重要基础及应用研究中的底层技术面临瓶颈，而深入开展分子磁体领域的研究也将促使我国发展出从 0 到 1 的原始创新成果。分子自旋科学与技术的研究具有以下特点：

交叉性。化学是研究创造新分子、认识新分子的学科，而自旋一直以来都是近代物理学的研究热点并具有核心地位，包括光合作用、候鸟导航等在内的许多生命过程的本质涉及到的正是分子自旋态和自旋微观态的变化及机理，磁性分子作为自旋载体在自旋电子学、量子信息科技中也具有不可取代的重要作用。因此，深入开展分子自旋科学与技术，离不开化学、物理、生命科学、材料科学、信息科学等多个学科的深入交叉融合。

前沿性。长久以来，传统化学的研究更多关注于分子中电子的电荷属性，对化学过程的关注也更多强调的是能量守恒，而分子自旋作为角动量的载体在化学反应和催化过程中起到传递角动量的作用，因此涉及到自旋过程的化学反应还应关注角动量守恒，这是以往化学研究所没有重视的。此外，磁性分子作为唯一一种可以宏量制备并实现原子级均一性的自旋载体，可能解决实现量子信息科学和自旋电子学等正在面临的材料限制。

应用性。分子自旋科学与技术的研究成果有潜力应用于产业升级。例如自旋诱导的手性合成可以大幅降低手性药物的合成难度；对候鸟导航机制的深刻理解可以应用于长距离方向指引；分子自旋极化技术可以制备微波激射器中的关键材料，实现极弱微波信号的放大侦查；动态核极化技术则可以获得更高的磁共振分辨率，实现医疗影像学的革命。

因此，针对分子自旋科学与技术的交叉性、前沿性和应用性，我们提出以下发展思路和政策建议：

首先，应当设置更丰富、多学科的初高等教育课程，发展一支多元化、多学科

交叉的研究队伍，打破学科壁垒。目前的分子自旋科学与技术的研究队伍主要由化学工作者组成，与其他国家类似，我国大多数传统的本科化学教育几乎不涉及量子力学和自旋科技，从业人员主要是在研究生或走上工作岗位以后开展非专业性的自主学习。这导致在各专业学生的学习过程中接受到的教育较为单一，显著的学科壁垒限制了分子自旋科技等交叉学科的深入发展。另一方面，同样由于学科壁垒的存在，一些从业人员也在自己较为熟悉的领域中固步自封，这也限制了多元化的交叉学科联合攻关，协同解决关键科学问题和技术瓶颈。

其次，在高等教育培养环节中强调并落实打牢基础、拓宽视野。老一辈科学家的“两弹一星”精神、航天精神等，把个人发展融入祖国发展中，值得青年一代学习，而这种服务国家战略的精神是通过扎实的学识基础、敏锐的科学触觉和广泛的科学视野作为依托。目前仍有一些研究者有功利化思想，过多关注成果和荣誉，缺乏对基础的深挖和巩固，缺乏对不显然与自身研究相关的其他领域的关注，这种浮躁的思想不利于服务国家战略或自由探索的原始创新。

第三，区分自由探索和目标导向两种不同的研究模式，构建符合基础研究规律和人才成长规律的评价体系。自由探索面向的是原始创新、颠覆性概念等未知的科研领域，是风险性更高的研究，支持的对象主要应该是人，而不是具体课题，即对有创新能力、知识面宽阔、基础扎实的人，进行长期稳定性支持，弱化竞争。目标导向则面向目标具体明确的研究难题，进行揭榜挂帅式的竞争选拔，并开展有组织的团队协同科研。在成果评价上，能够不迷信国际同行评价、不迷信所谓高水平国际期刊，形成公正、理性、客观、依据科学创新程度的评价标准。

第四，重视自主科研仪器研发，加强与企业合作。随着世界科技竞争的日趋激烈，国际市场化科学仪器的采购也多有掣肘，例如西方国家已经对涉及到我国量子信息科技研究的仪器进行了严格的限制。这倒逼我国科研工作者在开展前沿科学研究的同时，必须重视关键科研仪器的自主研发，一方面可以突破他国对我国前沿领域研究卡脖子的封锁，另一方面还可以对科研仪器具有更大自由度的改造和升级，从而促进科研工作。针对应用性基础研究，应当加强与企业或临床一线的合作交流，明确市场和一线需求。

第五，建议在分子自旋科学与技术研判研究的成果基础上，设立若干以“分子自旋科学与技术”为主要内容的国家重大科技项目，促进该交叉前沿科学领域蓬勃

发展，突破该领域的关键科学问题，推动相关研究成果转化为新质生产力，促进国民经济的高质量发展。此外，该类国家重大科技项目的设立，还可以培养发现青年研究人才，通过长期稳定性支持实现原始创新并建立颠覆性概念。更重要的是，设立该类国家重大科技项目，还可以凝聚更多的研究力量团队，在国际上赢得发展先机，形成该领域基础和应用基础研究的人才高地和中国名片。

党的二十大报告强调了对教育、科技和人才进行三位一体的统筹谋划和一体部署，进一步凸显了教育、科技、人才在现代化建设全局中的战略定位，明确指出科技发展应当“加强基础研究，突出原创，鼓励自由探索”。近几十年来，以自旋为对象的研究获得的诺贝尔奖有十余项，涉及到物理学，化学，生命科学等多个学科，自旋在当今科技发展中占据了核心地位。近 20 年以来，化学与生物的融合已经难分彼此，但化学与物理、生物与物理的融合尚有更大的空间，因此推动以分子的自旋效应为核心的学科交叉，可以帮助我们突破化学和生命过程中关键机制的难题、为新型电子学技术和量子信息科技等国家重点布局的研究领域提供关键材料基础、为生物医药产业革命提供分子水平上创新源泉。化学作为一门中心科学为物质科学和应用科学等众多一级学科建立了桥梁，发展分子自旋科学与技术，推动化学、物理、生物和信息科学的深度融合，是开展学科交叉探索、改变研究范式、实现原始创新的重要途径。

致谢

本报告根据国家自然科学基金委员会-中国科学院 2022 年前沿交叉研判战略联合项目“分子自旋科学与技术前沿交叉研判研究”（中国科学院资助编号 XK2022HXC001，基金委资助编号 L2224037）系列研讨会的讨论内容整理，作者感谢参与研讨的专家。

参考文献

- [1] Naaman R, Paltiel Y, Waldeck D H. Chiral induced spin selectivity gives a new twist on spin-control in chemistry[J]. *Accounts of Chemical Research*, 2020, 53(11): 2659–2667.
- [2] Xu G-C, Zhang W, Ma X-M, et al. Coexistence of magnetic and electric orderings in the metal–formate frameworks of $[\text{Ni}_4][\text{M}(\text{hcoo})_3]$ [J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2011, 133(38): 14948–14951.
- [3] Li X, Wu X, Li Z, et al. Bipolar magnetic semiconductors: a new class of spintronics materials[J]. *Nanoscale*, 2012, 4(18): 5680.
- [4] Vincent R, Klyatskaya S, Ruben M, et al. Electronic read-out of a single nuclear spin using a molecular spin transistor[J]. *Nature*, 2012, 488(7411): 357–360.
- [5] Yang K, Paul W, Phark S-H, et al. Coherent spin manipulation of individual atoms on a surface[J]. *Science*, 2019, 366(6464): 509–512.
- [6] Zhang R, Zhang Y, Dong Z C, et al. Chemical mapping of a single molecule by plasmon-enhanced raman scattering[J]. *Nature*, 2013, 498(7452): 82–86.
- [7] Li J F, Huang Y F, Ding Y, et al. Shell-isolated nanoparticle-enhanced raman spectroscopy[J]. *Nature*, 2010, 464(7287): 392–395.
- [8] Shi F, Zhang Q, Wang P, et al. Single-protein spin resonance spectroscopy under ambient conditions[J]. *Science*, 2015, 347(6226): 1135–1138.
- [9] Aslam N, Pfender M, Neumann P, et al. Nanoscale nuclear magnetic resonance with chemical resolution[J]. *Science*, 2017, 357(6346): 67–71.
- [10] Bayliss S L, Laorenza D W, Mintun P J, et al. Optically addressable molecular spins for quantum information processing[J]. *Science*, 2020, 370(6522): 1309–1312.
- [11] Hayashi H, Sakaguchi Y, Wakasa M. Magnetic field effects and spin dynamics of radical reactions in solution[J]. *Bulletin of the Chemical Society of Japan*, 2001, 74(5): 773–783.
- [12] Ye C, Mallick S, Hertzog M, et al. Direct transition from triplet excitons to hybrid light–matter states via triplet–triplet annihilation[J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2021, 143(19): 7501–7508.
- [13] Wu T, Ren X, Sun Y, et al. Spin pinning effect to reconstructed oxyhydroxide layer on ferromagnetic oxides for enhanced water oxidation[J]. *Nature Communications*, 2021, 12(1): 3634.
- [14] Shaik S, Chen H, Janardanan D. Exchange-enhanced reactivity in bond activation by metal–oxo enzymes and synthetic reagents[J]. *Nature Chemistry*, 2011, 3(1): 19–27.
- [15] Hu M-Y, He P, Qiao T-Z, et al. Iron-catalyzed regiodivergent alkyne hydrosilylation[J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2020, 142(39): 16894–16902.
- [16] Hu M-Y, Lian J, Sun W, et al. Iron-catalyzed dihydrosilylation of alkynes: efficient access to geminal bis(silanes)[J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2019, 141(11): 4579–4583.
- [17] Huang Q, Su Y-X, Sun W, et al. Iron-catalyzed vinylzincation of terminal alkynes[J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2022, 144(1): 515–526.
- [18] He P, Hu M-Y, Li J-H, et al. Spin effect on redox acceleration and regioselectivity in Fe-catalyzed alkyne hydrosilylation[J]. [no date]. .

- [19] Xu J, Jarocha L E, Zollitsch T, et al. Magnetic sensitivity of cryptochrome 4 from a migratory songbird[J]. *Nature*, 2021, 594(7864): 535–540.
- [20] Bradlaugh A A, Fedele G, Munro A L, et al. Essential elements of radical pair magnetosensitivity in drosophila[J]. *Nature*, 2023, 615(7950): 111–116.
- [21] Jin G-Q, Chau C V, Arambula J F, et al. Lanthanide porphyrinoids as molecular theranostics[J]. *Chemical Society Reviews*, 2022, 51(14): 6177–6209.
- [22] Ning Y, Jin G-Q, Zhang J-L. Porpholactone chemistry: an emerging approach to bioinspired photosensitizers with tunable near-infrared photophysical properties[J]. *Accounts of Chemical Research*, 2019, 52(9): 2620–2633.
- [23] Ferlay S, Mallah T, Ouahès R, et al. A room-temperature organometallic magnet based on prussian blue[J]. *Nature*, 1995, 378(6558): 701–703.
- [24] Manriquez J M, Yee G T, McLean R S, et al. A room-temperature molecular/organic-based magnet[J]. *Science*, 1991, 252(5011): 1415–1417.
- [25] Jiang Q, Zhang J, Mao Z, et al. Room-Temperature ferromagnetism in perylene diimide organic semiconductor[J]. *Advanced Materials*, 2022, 34(14): 2108103.
- [26] Li X, Yang J. Toward room-temperature magnetic semiconductors in two-dimensional ferrimagnetic organometallic lattices[J]. *The Journal of Physical Chemistry Letters*, 2019, 10(10): 2439–2444.
- [27] Perlepe P, Oyarzabal I, Mailman A, et al. Metal-organic magnets with large coercivity and ordering temperatures up to 242°C[J]. *Science*, 2020, 370(6516): 587–592.
- [28] Xu G-C, Ma X-M, Zhang L, et al. Disorder–Order ferroelectric transition in the metal formate framework of $[\text{nh}_4][\text{zn}(\text{hcoo})_3]$ [J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2010, 132(28): 9588–9590.
- [29] Li X, Yang J. First-principles design of spintronics materials[J]. *National Science Review*, 2016, 3(3): 365–381.
- [30] Li J, Li X, Yang J. A review of bipolar magnetic semiconductors from theoretical aspects[J]. *Fundamental Research*, 2022, 2(4): 511–521.
- [31] Evers F, Aharony A, Bar-Gill N, et al. Theory of chirality induced spin selectivity: progress and challenges[J]. *Advanced Materials*, 2022, 34(13): 2106629.
- [32] Caneschi A, Gatteschi D, Sessoli R, et al. Alternating current susceptibility, high field magnetization, and millimeter band epr evidence for a ground $s = 10$ state in $[\text{mn}_{12}\text{o}_{12}(\text{ch}_3\text{coo})_{16}(\text{h}_2\text{o})_4] \cdot 2\text{ch}_3\text{cooh} \cdot 4\text{h}_2\text{o}$ [J]. *Journal of the American Chemical Society*, 1991, 113(15): 5873–5874.
- [33] Wernsdorfer W, Sessoli R. Quantum phase interference and parity effects in magnetic molecular clusters[J]. *Science*, 1999, 284(5411): 133–135.
- [34] Bogani L, Wernsdorfer W. Molecular spintronics using single-molecule magnets[J]. *Nature Materials*, 2008, 7(3): 179–186.
- [35] Jiang S-D, Wang B-W, Sun H-L, et al. An organometallic single-ion magnet[J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2011, 133(13): 4730–4733.
- [36] Guo F-S, Day B M, Chen Y-C, et al. Magnetic hysteresis up to 80 kelvin in a dysprosium metallocene single-molecule magnet[J]. *Science*, 2018, 362(6421): 1400–1403.
- [37] Coronado E. Molecular magnetism: from chemical design to spin control in molecules, materials and devices[J]. *Nature Reviews Materials*, 2019, 5(2): 87–104.

- [38] Atzori M, Sessoli R. The second quantum revolution: role and challenges of molecular chemistry[J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2019, 141(29): 11339–11352.
- [39] Gaita-Ariño A, Luis F, Hill S, et al. Molecular spins for quantum computation[J]. *Nature Chemistry*, 2019, 11(4): 301–309.
- [40] Moreno-Pineda E, Godfrin C, Balestro F, et al. Molecular spin qubits for quantum algorithms[J]. *Chemical Society Reviews*, 2018, 47(2): 501–513.
- [41] Bader K, Dengler D, Lenz S, et al. Room temperature quantum coherence in a potential molecular qubit[J]. *Nature Communications*, 2014, 5(1): 5304.
- [42] Zadrozny J M, Niklas J, Poluektov O G, et al. Millisecond coherence time in a tunable molecular electronic spin qubit[J]. *ACS Central Science*, 2015, 1(9): 488–492.
- [43] Atzori M, Tesi L, Morra E, et al. Room-temperature quantum coherence and rabi oscillations in vanadyl phthalocyanine: toward multifunctional molecular spin qubits[J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2016, 138(7): 2154–2157.
- [44] Liu Z, Dong B-W, Meng H-B, et al. Qubit crossover in the endohedral fullerene $\text{Sc}_3\text{C}_2@C_{80}$ [J]. *Chemical Science*, 2018, 9(2): 457–462.
- [45] Zhou S, Yuan J, Wang Z, et al. Implementation of quantum level addressability and geometric phase manipulation in aligned endohedral fullerene qubits[J]. *Angewandte Chemie International Edition*, 2022, 61(8): e202115263.
- [46] Souza A M, Magalhães A, Teles J, et al. NMR analog of bell’s inequalities violation test[J]. *New Journal of Physics*, 2008, 10(3): 033020.
- [47] Urtizberea A, Natividad E, Alonso P J, et al. Vanadyl spin qubit 2d arrays and their integration on superconducting resonators[J]. *Materials Horizons*, 2020, 7(3): 885–897.
- [48] Pei T, Thomas J O, Sopp S, et al. Exchange-induced spin polarization in a single magnetic molecule junction[J]. *Nature Communications*, 2022, 13(1): 4506.
- [49] Savary L, Balents L. Quantum spin liquids: a review[J]. *Reports on Progress in Physics*, 2017, 80(1): 016502.
- [50] Shimizu Y, Miyagawa K, Kanoda K, et al. Spin liquid state in an organic mott insulator with a triangular lattice[J]. *Physical Review Letters*, 2003, 91(10): 107001.
- [51] Itou T, Oyamada A, Maegawa S, et al. Quantum spin liquid in the spin- 1/2 triangular antiferromagnet $\text{Cu}_3\text{Sb}(\text{PO}_4)_2$ [J]. *Physical Review B*, 2008, 77(10): 104413.
- [52] Zhang B, Zhang Y, Wang Z, et al. Candidate quantum spin liquid due to dimensional reduction of a two-dimensional honeycomb lattice[J]. *Scientific Reports*, 2014, 4(1): 6451.
- [53] Misumi Y, Yamaguchi A, Zhang Z, et al. Quantum spin liquid state in a two-dimensional semiconductive metal–organic framework[J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2020, 142(39): 16513–16517.
- [54] Mizuno A, Shuku Y, Matsushita M M, et al. 3D spin-liquid state in an organic hyperkagome lattice of mott dimers[J]. *Physical Review Letters*, 2017, 119(5): 057201.
- [55] Caravan P, Ellison J J, McMurry T J, et al. Gadolinium(iii) chelates as mri contrast agents: structure, dynamics, and applications[J]. *Chemical Reviews*, 1999, 99(9): 2293–2352.
- [56] Yao Y, Ran G, Hou C-L, et al. Nonaromatic organonickel(ii) phototheranostics[J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2022, 144(16): 7346–7356.
- [57] Wu L, Cao X, Chen X, et al. Visible-Light photocatalysis of $\text{C}(\text{sp}^3)\text{-H}$ fluorination by the uranyl ion: mechanistic insights[J]. *Angewandte Chemie International Edition*, 2018, 57(36):

11812–11816.

- [58] Ma L, Fang W-H, Shen L, et al. Regulatory mechanism and kinetic assessment of energy transfer catalysis mediated by visible light[J]. *ACS Catalysis*, 2019, 9(4): 3672–3684.
- [59] Wang J, Fang W-H, Qu L-B, et al. An expanded set model associated with the functional hindrance dominates the amide-directed distal sp³ c–h functionalization[J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2021, 143(46): 19406–19416.
- [60] Zhang D, Truhlar D G. Spin splitting energy of transition metals: a new, more affordable wave function benchmark method and its use to test density functional theory[J]. *Journal of Chemical Theory and Computation*, 2020, 16(7): 4416–4428.
- [61] Peng Q, Niu Y, Shi Q, et al. Correlation function formalism for triplet excited state decay: combined spin–orbit and nonadiabatic couplings[J]. *Journal of Chemical Theory and Computation*, 2013, 9(2): 1132–1143.
- [62] Mai S, Marquetand P, González L. A general method to describe intersystem crossing dynamics in trajectory surface hopping[J]. *International Journal of Quantum Chemistry*, 2015, 115(18): 1215–1231.
- [63] Nielsen C, Solov'yov I A. MolSpin—flexible and extensible general spin dynamics software[J]. *The Journal of Chemical Physics*, 2019, 151(19): 194105.
- [64] Shen L, Xie B, Li Z, et al. Role of multistate intersections in photochemistry[J]. *The Journal of Physical Chemistry Letters*, 2020, 11(20): 8490–8501.
- [65] Xie B-B, Liu B-L, Tang X-F, et al. Nonadiabatic dynamics simulation of photoinduced ring-opening reaction of 2(5 h)-thiophenone with internal conversion and intersystem crossing[J]. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 2021, 23(16): 9867–9877.