

Photo-modulation of Single-Molecule Magnetic Dynamics of a Dysprosium Dinuclear Complex via a Diarylethene Bridge

Goulven Cosquer,^{*a,b} Mritunjoy Kamila,^a Brian K. Breedlove,^a and Masahiro Yamashita^{*a,b,c,d}

^a Department of Chemistry, Graduate School of Science, Tohoku University, 6-3 Aramaki-Aza-Aoba, Sendai 980-8578 (Japan)

^b CREST, JST, 4-1-8 Honcho, Kawaguchi, Saitama 332-0012 (Japan)

^c WPI Research Center, Advanced Institute for Materials Research, Tohoku University, 2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai 980-8577 (Japan)

^d School of Materials Science and Engineering, Nankai University, Tianjin 300350, China

SUPPORTING INFORMATION

	2_{open}	2_{close}
Formula	C ₇₂ H ₅₀ Dy ₂ F ₃₆ N ₄ O ₁₂ S ₂	C ₇₂ H ₅₀ Dy ₂ F ₃₆ N ₄ O ₁₂ S ₂
Molecular weight (g mol ⁻¹)	2236.26	2236.26
Crystal system	monoclinic	triclinic
Space group	C2/c	P1
<i>a</i> Å	28.340 (4)	11.7047 (3)
<i>b</i> Å	12.5017 (16)	19.6164 (1)
<i>c</i> Å	26.031 (3)	20.8522 (2)
α °	90	71.022 (8)
β °	112.042 (1)	79.601 (9)
γ °	90	70.806 (7)
<i>V</i> Å ³	8548.7 (18)	4261.3 (3)
<i>Z</i>	4	2
<i>R</i> _{int} , <i>R</i> ₁ , <i>wR</i> ₂ (%)	2.63, 7.84, 20.07	2.30, 3.65, 9.28

Table S1: Summary of the crystal parameters for **2_{open}** and **2_{close}**.

		2_{open}		2_{close}	
		Dy1 _A	Dy1 _B	Dy1	Dy2
<i>D_{4d}</i>	Square anti-prism	2.007	3.252	0.495	0.404
<i>C_{2v}</i>	Bi-augmented trigonal prism	2.493	4.012	2.466	2.304
<i>C_{2v}</i>	Bi-augmented trigonal prism J50	3.236	4.528	2.974	2.880
<i>D_{2d}</i>	Triangular dodecahedron	0.849	2.634	2.417	2.543

Table S2: deviation from the idealized coordination geometries obtained by using SHAPE

2.1. Lowest value is better.

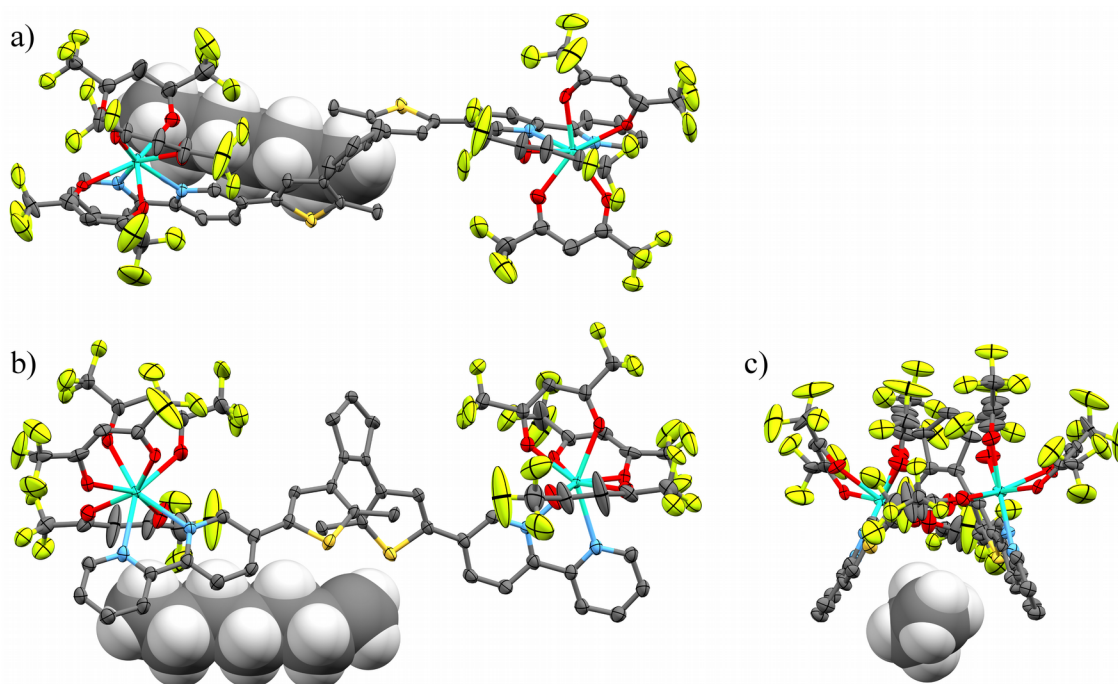


Figure S1: (a) top, (b) front and (c) side views of the interactions between the DTE ligand and the heptane solvent molecule in **2_{open}**.

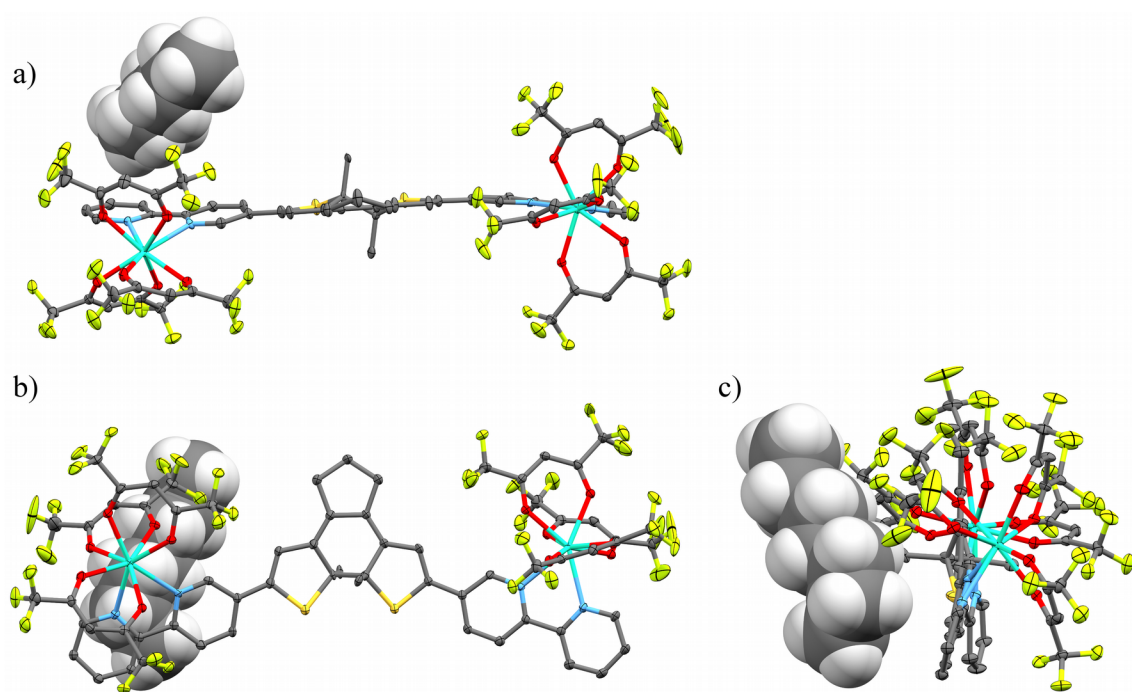


Figure S2: (a) top, (b) front and (c) side views of the interactions between the DTE ligand and the heptane solvent molecule in 2_{close} .

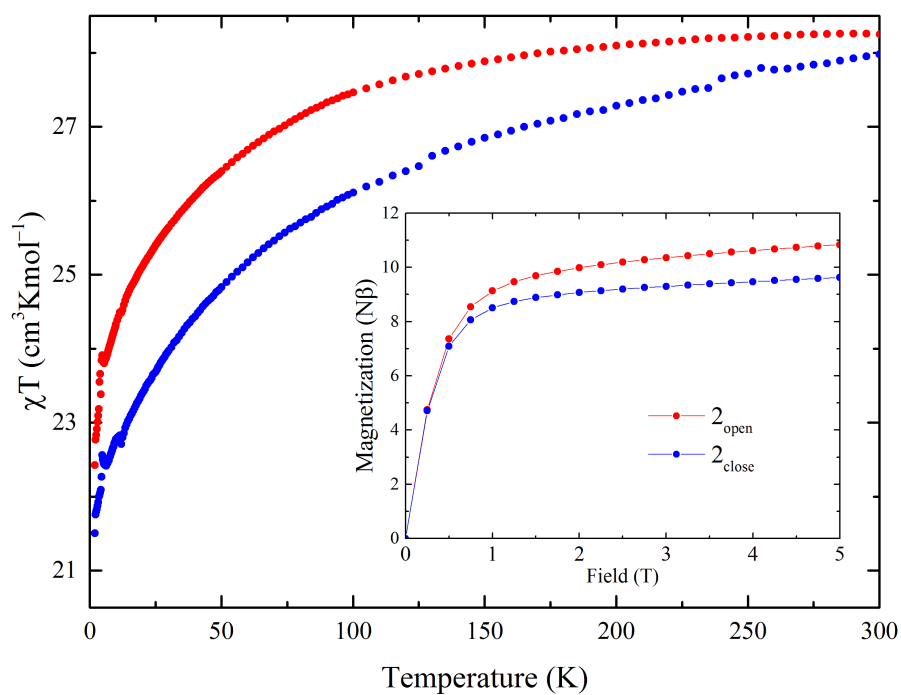


Figure S3: T dependence of χT for 2_{open} and 2_{close} and the field dependence of the magnetization at 1.82 K in inset.

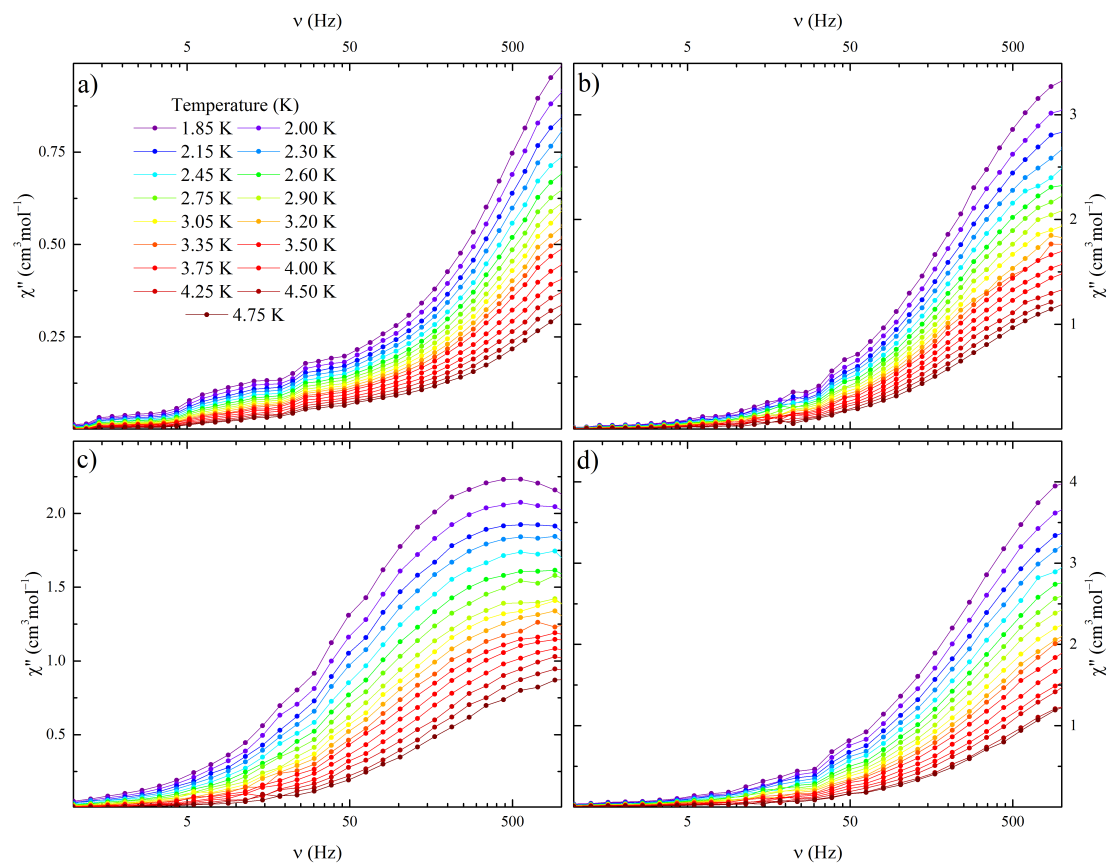


Figure S4: T and ν dependences of χ'' in (a and b) the solid state and (c and d) solution state, for $\mathbf{2}_{\text{open}}$ and $\mathbf{2}_{\text{close}}$, respectively, in a 0 Oe magnetic field.

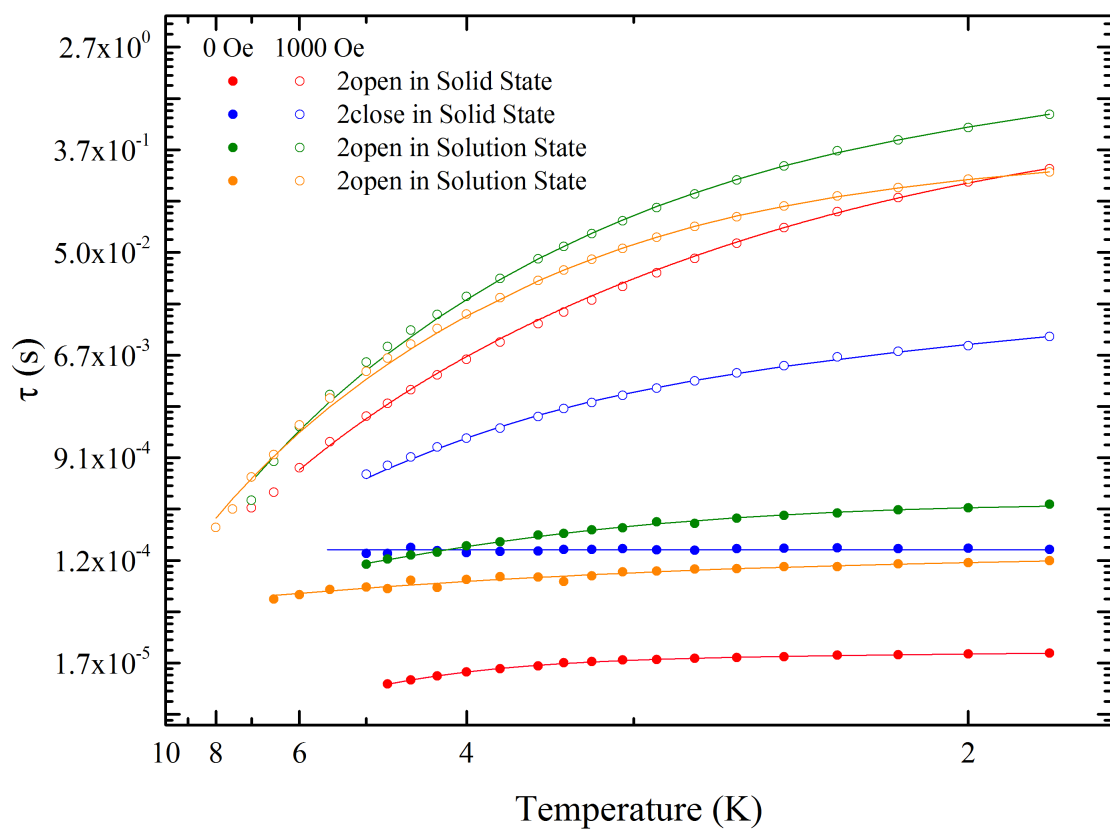


Figure S5: Arrhenius plots with best-fit curves (lines).

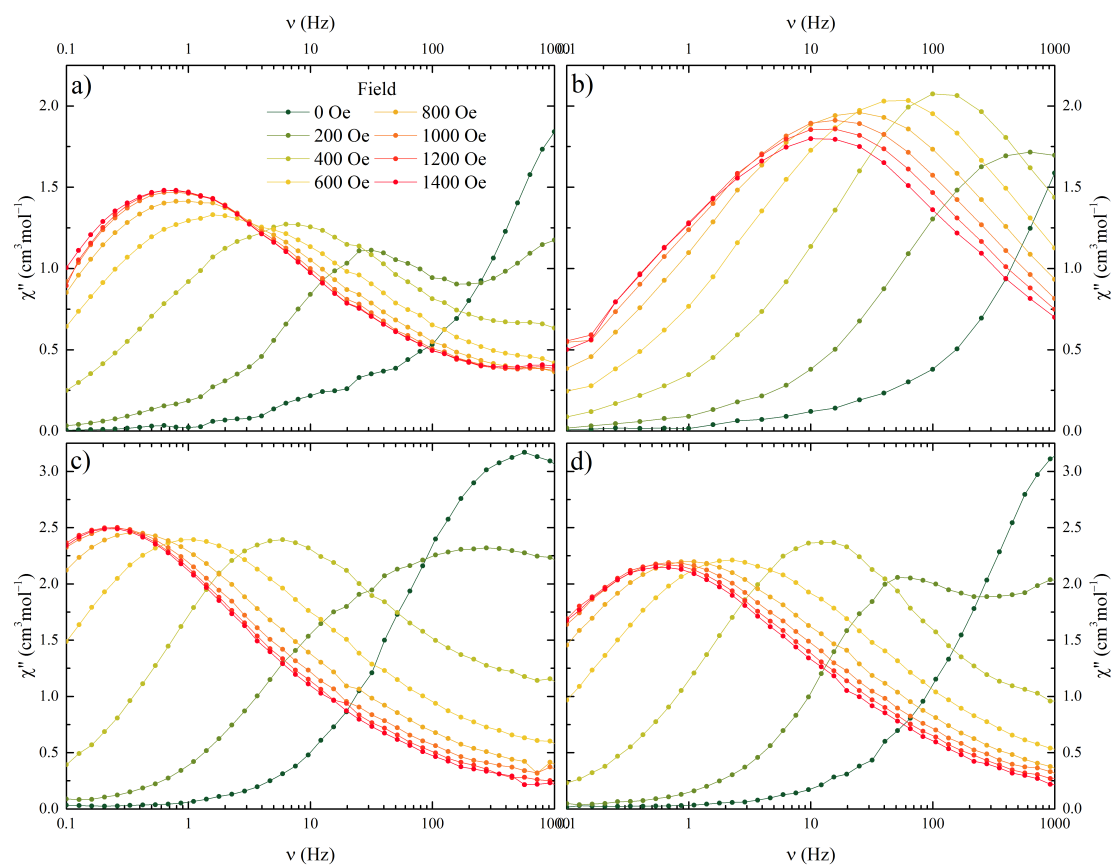


Figure S6: H and ν dependences of χ'' in (a and b) the solid state and (c and d) solution state for 2_{open} and 2_{close} , respectively, at 1.85 K.

Process		Direct				Raman			Orbach				QTM		Statistics	
Parameter		A		H	n	C		m	Δ		τ_0		QTM		Chisqr	RR
Unit		$s^{-1} \cdot K^{-n} \cdot Oe^{-4}$		Oe		$s^{-1} \cdot K^{-m}$			cm^{-1}		s		s^{-1}			
		Value	Standard Error			Value	Standard Error		Value	Standard Error	Value	Standard Error	Value	Standard Error		
Solid State	2_{open}			0					19.08107 0.36954	1.27119 0.07024	5.2×10^{-7} 1.7×10^{-5}	1.3×10^{-7} 5.7×10^{-7}			1.86×10^{-14}	0.99773
		9.5×10^{-13}	2.5×10^{-14}	1000	1	0.07267	0.00112	5.5							2.59×10^{-6}	0.9995
	2_{close}			0					28.25	3.27	1.02×10^{-6}	5.64×10^{-7}	1.51×10^{-4}	2.79×10^{-6}	8.37×10^{-7}	0.95802
		2.99×10^{-11}	2.70×10^{-13}	1000	2				16.72	1.40	9.14×10^{-6}	4.96×10^{-6}			1.48×10^{-8}	0.99802
Solution State	2_{open}			0					7.16	0.30	2.1×10^{-5}	2.0×10^{-6}	3.79×10^{-4}	8.95×10^{-6}	4.0×10^{-2}	0.99574
		3.10×10^{-13}	2.87×10^{-15}	1000	2	5.5×10^{-5}	1.02×10^{-4}	6.5							1.49×10^{-5}	0.99965
	2_{close}			0					4.48	0.73	4.20×10^{-5}	6.80×10^{-6}	1.33×10^{-4}	8.53×10^{-6}	1.84×10^{-7}	0.95451
		1.89×10^{-12}	1.53×10^{-14}	1000	1	1.9×10^{-2}	1.29×10^{-3}	5.85							4.81×10^{-7}	0.99991

Table S3: Summary of the fitting parameters for the complete model.

Temperature		χ_{iso}		α		τ		Chisqr	RR
K		$\text{cm}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$				s			
		Value	Standard Error	Value	Standard Error ($\times 10^{-3}$)	Value	Standard Error		
0 Oe	1.85	6.01	0.01	0.40	6.79	2.02×10^{-5}	5.74×10^{-7}	1.17×10^{-3}	0.99984
	2.00	5.59	0.01	0.40	6.41	2.00×10^{-5}	5.37×10^{-7}	8.87×10^{-4}	0.99986
	2.15	5.23	0.01	0.40	6.23	1.96×10^{-5}	5.19×10^{-7}	7.30×10^{-4}	0.99987
	2.30	4.93	0.01	0.40	6.29	1.95×10^{-5}	5.21×10^{-7}	6.56×10^{-4}	0.99987
	2.45	4.62	0.01	0.41	6.13	1.89×10^{-5}	4.98×10^{-7}	5.36×10^{-4}	0.99988
	2.60	4.35	0.01	0.41	6.04	1.86×10^{-5}	4.82×10^{-7}	4.51×10^{-4}	0.99989
	2.75	4.13	0.01	0.40	5.82	1.83×10^{-5}	4.58×10^{-7}	3.69×10^{-4}	0.99990
	2.90	3.92	0.01	0.40	5.76	1.79×10^{-5}	4.47×10^{-7}	3.20×10^{-4}	0.99990
	3.05	3.73	0.01	0.40	5.70	1.77×10^{-5}	4.34×10^{-7}	2.76×10^{-4}	0.99991
	3.20	3.57	0.01	0.40	5.73	1.72×10^{-5}	4.30×10^{-7}	2.52×10^{-4}	0.99991
	3.35	3.42	0.01	0.40	5.58	1.67×10^{-5}	4.10×10^{-7}	2.12×10^{-4}	0.99991
	3.50	3.28	0.01	0.40	4.90	1.58×10^{-5}	3.46×10^{-7}	1.44×10^{-4}	0.99994
	3.75	3.07	0.01	0.41	5.72	1.50×10^{-5}	3.91×10^{-7}	1.65×10^{-4}	0.99992
	4.00	2.88	0.01	0.40	5.41	1.40×10^{-5}	3.53×10^{-7}	1.22×10^{-4}	0.99993
	4.25	2.72	0.01	0.40	4.72	1.29×10^{-5}	2.89×10^{-7}	7.59×10^{-5}	0.99995
	4.50	2.57	0.01	0.41	6.09	1.20×10^{-5}	3.57×10^{-7}	1.07×10^{-4}	0.99992
	4.75	2.44	0.01	0.40	4.65	1.11×10^{-5}	2.54×10^{-7}	5.08×10^{-5}	0.99996

Table S4: Fitting parameters for the Cole-Cole model for the frequency dependence of χ of $\mathbf{2}_{\text{open}}$ in the solid state in a 0 Oe field. χ_{adia} was fixed at 0

Temperature		χ_{iso}		α		τ		χ_{iso}		α		τ		Chisqr	RR
K		$\text{cm}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$				s		$\text{cm}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$				s			
		Value	Standard Error	Value ($\times 10^{-1}$)	Standard Error ($\times 10^{-3}$)	Value	Standard Error	Value	Standard Error	Value	Standard Error	Value	Standard Error		
1000 Oe	1.85	7.29	0.13	4.97	5.79	2.53×10^{-1}	4.25×10^{-3}	5.00	0.10	0.69	0.03	4.96×10^{-7}	1.15×10^{-7}	3.74×10^{-4}	0.99996
	2.00	6.77	0.13	4.86	6.15	1.96×10^{-1}	3.44×10^{-3}	4.67	0.10	0.69	0.03	4.06×10^{-7}	1.30×10^{-7}	4.37×10^{-4}	0.99995
	2.15	6.17	0.13	4.72	6.08	1.45×10^{-1}	2.38×10^{-3}	4.48	0.12	0.72	0.04	2.33×10^{-7}	9.15×10^{-8}	3.64×10^{-4}	0.99996
	2.30	5.73	0.13	4.59	6.45	1.10×10^{-1}	1.89×10^{-3}	4.29	0.13	0.72	0.04	1.98×10^{-7}	9.31×10^{-8}	3.79×10^{-4}	0.99995
	2.45	5.26	0.16	4.45	7.30	8.05×10^{-2}	1.39×10^{-3}	4.13	0.17	0.74	0.05	1.21×10^{-7}	7.27×10^{-8}	3.57×10^{-4}	0.99995
	2.60	4.96	0.17	4.40	8.41	5.96×10^{-2}	1.28×10^{-3}	3.89	0.19	0.73	0.07	1.15×10^{-7}	9.68×10^{-8}	4.50×10^{-4}	0.99994
	2.75	4.64	0.06	4.27	4.43	4.44×10^{-2}	5.42×10^{-4}	3.72	0.06	0.72	0.01	1.10×10^{-7}	0	2.62×10^{-4}	0.99996
	2.90	4.39	0.05	4.20	3.90	3.34×10^{-2}	3.79×10^{-4}	3.53	0.05	0.71	0.01	1.10×10^{-7}	0	2.06×10^{-4}	0.99997
	3.05	4.16	0.05	4.11	4.12	2.56×10^{-2}	3.14×10^{-4}	3.38	0.05	0.70	0.01	1.10×10^{-7}	0	2.16×10^{-4}	0.99996
	3.20	4.06	0.04	4.10	3.29	1.97×10^{-2}	2.06×10^{-4}	3.18	0.03	0.67	0.01	1.10×10^{-7}	0	1.34×10^{-4}	0.99998
	3.35	3.74	0.056	3.95	4.26	1.56×10^{-2}	2.01×10^{-4}	3.14	0.05	0.69	0.02	1.10×10^{-7}	0	1.84×10^{-4}	0.99997
	3.50	3.56	0.05	3.88	4.52	1.24×10^{-2}	1.70×10^{-4}	3.03	0.05	0.69	0.02	1.10×10^{-7}	0	1.83×10^{-4}	0.99997
	3.75	3.28	0.05	3.76	5.01	8.67×10^{-3}	1.28×10^{-4}	2.88	0.06	0.68	0.02	1.10×10^{-7}	0	1.68×10^{-4}	0.99997
	4.00	3.04	0.06	3.66	5.69	6.22×10^{-3}	1.03×10^{-4}	2.74	0.06	0.68	0.03	1.10×10^{-7}	0	1.62×10^{-4}	0.99996
	4.25	2.82	0.08	3.56	7.61	4.57×10^{-3}	9.66×10^{-5}	2.64	0.08	0.67	0.04	1.10×10^{-7}	0	2.07×10^{-4}	0.99995
	4.50	2.63	0.08	3.50	7.89	3.43×10^{-3}	7.65×10^{-5}	2.53	0.08	0.69	0.04	1.10×10^{-7}	0	1.72×10^{-4}	0.99996
	4.75	2.48	0.08	3.47	8.54	2.63×10^{-3}	6.79×10^{-5}	2.43	0.08	0.64	0.05	1.10×10^{-7}	0	1.70×10^{-4}	0.99995
	5.00	2.32	0.10	3.45	10.75	2.04×10^{-3}	6.50×10^{-5}	2.36	0.10	0.64	0.06	1.10×10^{-7}	0	1.81×10^{-4}	0.99995
	5.50	2.05	0.12	3.47	13.16	1.24×10^{-3}	5.92×10^{-5}	2.22	0.12	0.60	0.09	1.10×10^{-7}	0	1.78×10^{-4}	0.99994
	6.00	1.82	0.17	3.61	18.79	7.51×10^{-4}	6.42×10^{-5}	2.11	0.18	0.57	0.15	1.10×10^{-7}	0	1.89×10^{-4}	0.99993
	6.50	1.58	0.29	3.81	30.01	4.66×10^{-4}	7.92×10^{-5}	2.07	0.29	0.55	0.25	1.10×10^{-7}	0	1.94×10^{-4}	0.99992
	7.00	1.27	0.39	3.89	45.12	3.44×10^{-4}	9.75×10^{-5}	2.12	0.39	0.54	0.33	1.10×10^{-7}	0	1.80×10^{-4}	0.99992
	7.50	0.95	0.30	3.71	48.53	3.29×10^{-4}	9.39×10^{-5}	2.23	0.30	0.53	0.25	1.10×10^{-7}	0	1.21×10^{-4}	0.99994
	8.00	0.70	0.19	3.42	45.91	3.35×10^{-4}	8.33×10^{-5}	2.28	0.19	0.51	0.19	1.10×10^{-7}	0	8.29×10^{-5}	0.99996
	8.50	0.53	0.14	3.16	45.54	3.29×10^{-4}	7.71×10^{-5}	2.28	0.14	0.49	0.15	1.10×10^{-7}	0	6.06×10^{-5}	0.99997

Table S5: Fitting parameters for the two relaxation Cole-Cole model for the frequency dependence of χ of $\mathbf{2}_{\text{open}}$ in the solid state in a 1000 Oe field.

χ_{adia} was fixed at 0

Temperature		χ_{adia}		χ_{iso}		α		τ		Chisqr	RR
K		$\text{cm}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$		$\text{cm}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$		s		s			
		Value	Standard Error	Value	Standard Error	Value ($\times 10^{-1}$)	Standard Error ($\times 10^{-3}$)	Value	Standard Error		
0 Oe	1.85	2.57	0.20	11.48	0.21	2.27	7.49	1.23×10^{-4}	4.26×10^{-6}	4.32×10^{-3}	0.99988
	2.00	2.36	0.19	10.64	0.20	2.26	7.46	1.18×10^{-4}	4.16×10^{-6}	3.56×10^{-3}	0.99989
	2.15	2.24	0.17	9.85	0.18	2.25	7.18	1.15×10^{-4}	3.95×10^{-6}	2.77×10^{-3}	0.99999
	2.30	1.95	0.18	9.46	0.19	2.25	7.57	1.09×10^{-4}	4.05×10^{-6}	2.69×10^{-3}	0.99989
	2.45	2.04	0.17	8.64	0.18	2.19	7.92	1.09×10^{-4}	4.17×10^{-6}	2.48×10^{-3}	0.99988
	2.60	1.93	0.16	8.14	0.16	2.17	7.57	1.05×10^{-4}	3.90×10^{-6}	1.93×10^{-3}	0.99999
	2.75	1.99	0.15	7.53	0.15	2.12	7.45	1.04×10^{-4}	3.78×10^{-6}	1.60×10^{-3}	0.99991
	2.90	1.90	0.15	7.12	0.16	2.09	8.09	9.99×10^{-5}	4.00×10^{-6}	1.62×10^{-3}	0.99999
	3.05	1.99	0.13	6.60	0.13	2.09	7.23	9.84×10^{-5}	3.55×10^{-6}	1.10×10^{-3}	0.99992
	3.20	1.82	0.12	6.36	0.13	2.09	6.88	9.15×10^{-5}	3.28×10^{-6}	8.57×10^{-4}	0.99993
	3.35	1.44	0.14	6.38	0.14	2.12	7.23	8.19×10^{-5}	3.30×10^{-6}	8.40×10^{-4}	0.99993
	3.50	1.89	0.12	5.59	0.12	1.98	7.46	8.92×10^{-5}	3.42×10^{-6}	7.67×10^{-4}	0.99993
	3.75	2.05	0.10	4.93	0.11	1.87	7.53	8.99×10^{-5}	3.38×10^{-6}	6.21×10^{-4}	0.99994
	4.00	2.04	0.09	4.52	0.10	1.89	7.14	8.51×10^{-5}	3.14×10^{-6}	4.38×10^{-4}	0.99995
	4.25	1.60	0.11	4.58	0.11	1.87	7.22	7.28×10^{-5}	2.97×10^{-6}	3.85×10^{-4}	0.99995
	4.50	2.21	0.07	3.63	0.07	1.79	6.87	8.37×10^{-5}	2.93×10^{-6}	2.60×10^{-4}	0.99996
	4.75	1.74	0.09	3.80	0.09	1.77	7.19	7.10×10^{-5}	2.87×10^{-6}	2.56×10^{-4}	0.99996
	5.00	2.03	0.07	3.23	0.07	1.75	6.85	7.30×10^{-5}	2.76×10^{-6}	1.74×10^{-4}	0.99997
	5.50	1.95	0.08	2.84	0.08	1.51	9.05	7.02×10^{-5}	3.41×10^{-6}	2.28×10^{-4}	0.99995
	6.00	1.83	0.10	2.58	0.10	1.45	11.23	6.32×10^{-5}	4.04×10^{-6}	2.54×10^{-4}	0.99994
	6.50	1.75	0.10	2.33	0.10	1.43	11.74	5.79×10^{-5}	4.09×10^{-6}	2.01×10^{-4}	0.99995

Table S6: Fitting parameters for the Cole-Cole model for the frequency dependence of χ'' of $\mathbf{2}_{\text{close}}$ in the solid state in a 0 Oe field.

Temperature		χ_{adia}		χ_{iso}		β		α		τ		$\tau_{\text{corrected}}$	Chisqr	RR
K		$\text{cm}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$		$\text{cm}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$						s		s		
		Value	Standard Error ($\times 10^{-2}$)	Value	Standard Error ($\times 10^{-2}$)	Value ($\times 10^{-1}$)	Standard Error ($\times 10^{-2}$)	Value ($\times 10^{-1}$)	Standard Error ($\times 10^{-3}$)	Value	Standard Error	Value		
1000 Oe	1.85	0.32	1.43	13.76	5.12	0.73	1.43	4.68	5.51	4.26×10^{-1}	1.31×10^{-2}	2.39×10^{-1}	2.52×10^{-4}	0.99997
	2.00	0.26	1.54	12.73	4.40	0.66	1.30	4.42	5.86	4.30×10^{-1}	1.25×10^{-2}	2.07×10^{-1}	2.63×10^{-4}	0.99996
	2.15	0.28	1.48	11.86	3.59	0.65	1.22	4.34	5.51	3.71×10^{-1}	1.04×10^{-2}	1.76×10^{-1}	2.33×10^{-4}	0.99996
	2.30	0.30	1.85	11.19	3.87	0.65	1.50	4.28	6.69	3.16×10^{-1}	1.11×10^{-2}	1.49×10^{-1}	3.54×10^{-4}	0.99994
	2.45	0.30	1.79	10.48	3.08	0.62	1.34	4.12	6.25	2.74×10^{-1}	8.90×10^{-3}	1.23×10^{-1}	3.14×10^{-4}	0.99995
	2.60	0.30	2.04	9.87	2.95	0.61	1.45	4.02	6.81	2.27×10^{-1}	8.21×10^{-3}	9.97×10^{-2}	3.86×10^{-4}	0.99993
	2.75	0.25	1.66	9.32	1.99	0.56	0.99	3.73	5.26	2.09×10^{-1}	5.39×10^{-3}	8.28×10^{-2}	2.27×10^{-4}	0.99996
	2.90	0.25	2.15	8.82	2.30	0.55	1.21	3.61	6.48	1.72×10^{-1}	5.54×10^{-3}	6.67×10^{-2}	3.54×10^{-4}	0.99993
	3.05	0.31	1.97	8.34	1.98	0.56	1.13	3.56	5.76	1.33×10^{-1}	4.05×10^{-3}	5.36×10^{-2}	2.93×10^{-4}	0.99994
	3.20	0.27	2.31	7.93	2.19	0.52	1.17	3.33	6.42	1.16×10^{-1}	3.75×10^{-3}	4.37×10^{-2}	3.57×10^{-4}	0.99993
	3.35	0.25	2.27	7.58	2.09	0.51	1.08	3.24	5.96	9.53×10^{-2}	2.91×10^{-3}	3.52×10^{-2}	3.05×10^{-4}	0.99994
	3.50	0.21	3.34	7.27	3.03	0.48	1.44	3.10	8.27	8.22×10^{-2}	3.43×10^{-3}	2.88×10^{-2}	5.60×10^{-4}	0.99988
	3.75	0.27	2.99	6.72	2.73	0.49	1.28	2.98	7.07	5.76×10^{-2}	2.14×10^{-3}	2.06×10^{-2}	3.99×10^{-4}	0.99991
	4.00	0.27	2.92	6.28	2.69	0.47	1.18	2.86	6.47	4.29×10^{-2}	1.49×10^{-3}	1.50×10^{-2}	3.09×10^{-4}	0.99993
	4.25	0.24	4.76	5.93	4.44	0.44	1.69	2.66	9.8	3.46×10^{-2}	1.77×10^{-3}	1.13×10^{-2}	6.22×10^{-4}	0.99985
	4.50	0.05	4.58	5.75	4.34	0.38	1.24	2.40	8.15	2.96×10^{-2}	1.18×10^{-3}	8.34×10^{-3}	3.60×10^{-4}	0.99991
	4.75	0.02	3.86	5.48	3.69	0.36	0.96	2.34	6.29	2.36×10^{-2}	7.39×10^{-4}	6.33×10^{-3}	1.86×10^{-4}	0.99995
	5.00	0.10	4.21	5.14	4.05	0.36	1.06	2.29	6.63	1.82×10^{-2}	6.20×10^{-4}	4.90×10^{-3}	1.84×10^{-4}	0.99995
	5.50	0.00	5.15	4.78	5.03	0.32	1.04	2.13	6.61	1.23×10^{-2}	4.25×10^{-4}	2.92×10^{-3}	1.32×10^{-4}	0.99996
	6.00	0.00	13.76	4.39	13.53	0.30	2.51	2.17	14.45	7.90×10^{-3}	6.59×10^{-4}	1.73×10^{-3}	4.62×10^{-4}	0.99984
	6.50	0.00	17.58	4.07	17.39	0.30	3.08	2.45	14.02	4.75×10^{-3}	4.75×10^{-4}	9.65×10^{-4}	3.17×10^{-4}	0.99988
	7.00	0.00	24.27	3.78	24.11	0.25	3.35	2.31	15.49	3.71×10^{-3}	4.15×10^{-4}	6.25×10^{-4}	2.44×10^{-4}	0.9999
	7.50	0	0	3.53	0.67	0.26	1.44	2.62	19.89	2.12×10^{-3}	1.99×10^{-4}	3.34×10^{-4}	6.37×10^{-4}	0.99972
	8.00	0	0	3.31	0.41	0.20	0.90	2.30	16.63	1.88×10^{-3}	1.33×10^{-4}	2.35×10^{-4}	2.63×10^{-4}	0.99988

Table S7: Fitting parameters for the Havriliak-Negami model for the frequency dependence of χ'' of $\mathbf{2}_{\text{close}}$ in the solid state in a 1000 Oe field.

Temperature		χ_{iso}		β		α		τ		$\tau_{\text{corrected}}$	Chisqr	RR
K		$\text{cm}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$						s		s		
		Value	Standard Error ($\times 10^{-3}$)	Value ($\times 10^{-1}$)	Standard Error ($\times 10^{-2}$)	Value ($\times 10^{-1}$)	Standard Error ($\times 10^{-3}$)	Value ($\times 10^{-4}$)	Standard Error ($\times 10^{-5}$)	Value ($\times 10^{-4}$)		
0 Oe	1.85	8.95	14.86	5.23	1.57	2.50	9.07	8.73	4.36	3.67	1.72×10^{-3}	0.99986
	2.00	8.22	13.93	5.28	1.67	2.48	9.40	8.03	4.22	3.43	1.56×10^{-3}	0.99985
	2.15	7.64	11.44	4.96	1.41	2.28	8.83	8.16	3.74	3.29	1.13×10^{-3}	0.99987
	2.30	7.26	10.74	5.04	1.46	2.31	8.78	7.55	3.55	3.10	1.01×10^{-3}	0.99988
	2.45	6.80	9.13	5.01	1.35	2.29	8.11	7.22	3.15	2.95	7.45×10^{-4}	0.99999
	2.60	6.36	8.41	4.87	1.33	2.24	8.25	7.10	3.10	2.81	6.50×10^{-4}	0.99999
	2.75	5.98	9.74	5.18	1.84	2.34	10.10	5.98	3.48	2.54	8.78×10^{-4}	0.99985
	2.90	5.64	5.82	4.37	0.96	1.97	7.09	7.31	2.47	2.61	3.39×10^{-4}	0.99994
	3.05	5.36	7.29	4.77	1.48	2.12	9.16	5.94	2.90	2.32	5.33×10^{-4}	0.99989
	3.20	5.10	5.77	4.58	1.20	2.00	7.94	5.93	2.41	2.23	3.48×10^{-4}	0.99992
	3.35	4.88	6.22	4.52	1.39	1.98	9.22	5.62	2.67	2.09	4.13×10^{-4}	0.99999
	3.50	4.67	4.78	4.25	1.07	1.84	7.78	5.74	2.19	2.01	2.52×10^{-4}	0.99993
	3.75	4.37	4.38	4.49	1.19	1.84	7.73	4.72	1.90	1.77	2.21×10^{-4}	0.99993
	4.00	4.11	4.40	4.23	1.25	1.65	8.86	4.57	2.00	1.63	2.38×10^{-4}	0.99992
	4.25	3.86	4.05	4.62	1.48	1.90	8.56	3.74	1.84	1.44	1.96×10^{-4}	0.99993
	4.50	3.61	3.67	3.93	1.23	1.38	9.40	4.05	1.80	1.37	1.81×10^{-4}	0.99993
	4.75	3.45	2.79	3.68	0.97	1.32	8.00	3.99	1.48	1.26	1.07×10^{-4}	0.99995
	5.00	3.28	2.47	3.69	0.97	1.27	7.73	3.59	1.32	1.14	8.66×10^{-5}	0.99996

Table S8: Fitting parameters for the Havriliak-Negami model for the frequency dependence of χ'' of **2_{open}** in the solution state in a 1000 Oe field.

X_{adia} was fixed at 0

Temperature		χ_{adia}		χ_{iso}		β		α		τ		$\tau_{\text{corrected}}$	Chisqr	RR
K		$\text{cm}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$		$\text{cm}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$						s		s		
		Value ($\times 10^{-1}$)	Standard Error ($\times 10^{-2}$)	Value	Standard Error ($\times 10^{-2}$)	Value ($\times 10^{-1}$)	Standard Error ($\times 10^{-2}$)	Value ($\times 10^{-1}$)	Standard Error ($\times 10^{-3}$)	Value	Standard Error ($\times 10^{-3}$)	Value		Value
1000 Oe	1.85	2.32	0.85	9.15	7.39	5.79	1.44	4.19	9.81	1.88×10^0	37.88	7.35×10^{-1}	9.16×10^{-5}	0.99996
	2.00	2.40	0.91	8.37	5.94	5.44	1.33	3.82	10.11	1.52×10^0	30.94	5.68×10^{-1}	1.14×10^{-4}	0.99995
	2.15	2.29	0.70	7.78	3.40	5.17	0.89	3.50	7.21	1.23×10^0	18.27	4.44×10^{-1}	6.85×10^{-5}	0.99997
	2.30	2.01	1.37	7.26	4.87	4.68	1.39	3.01	13.34	1.07×10^0	26.8	3.62×10^{-1}	2.66×10^{-4}	0.99987
	2.45	2.15	1.41	6.63	3.58	4.57	1.29	2.75	12.46	7.86×10^{-1}	20.39	2.67×10^{-1}	2.90×10^{-4}	0.99986
	2.60	2.07	1.12	6.27	2.20	4.59	0.96	2.72	8.82	5.95×10^{-1}	12.52	2.04×10^{-1}	1.72×10^{-4}	0.99992
	2.75	2.43	0.84	5.92	1.37	4.79	0.73	2.75	6.06	4.29×10^{-1}	7.31	1.55×10^{-1}	9.76×10^{-5}	0.99995
	2.90	2.48	0.77	5.59	1.04	4.70	0.63	2.57	5.17	3.29×10^{-1}	5.05	1.19×10^{-1}	8.09×10^{-5}	0.99996
	3.05	2.05	1.59	5.35	1.81	4.46	1.12	2.38	9.65	2.66×10^{-1}	7.73	9.23×10^{-2}	2.96×10^{-4}	0.99986
	3.20	2.22	1.19	5.07	1.24	4.45	0.81	2.26	6.76	2.04×10^{-1}	4.37	7.16×10^{-2}	1.57×10^{-4}	0.99992
	3.35	2.50	0.78	4.82	0.78	4.55	0.54	2.24	4.23	1.54×10^{-1}	2.22	5.57×10^{-2}	6.46×10^{-5}	0.99997
	3.50	2.36	1.07	4.62	1.03	4.44	0.69	2.14	5.45	1.23×10^{-1}	2.34	4.38×10^{-2}	1.07×10^{-4}	0.99995
	3.75	2.32	1.02	4.32	0.96	4.32	0.61	1.99	4.73	8.55×10^{-2}	1.46	3.00×10^{-2}	7.89×10^{-5}	0.99996
	4.00	1.88	2.05	4.11	1.93	3.94	1.01	1.66	8.60	6.46×10^{-2}	1.92	2.12×10^{-2}	2.40×10^{-4}	0.99987
	4.25	1.83	2.53	3.82	2.37	4.12	1.34	2.03	9.65	4.50×10^{-2}	1.78	1.48×10^{-2}	2.65×10^{-4}	0.99984
	4.50	2.34	1.62	3.59	1.53	4.09	0.86	1.85	5.99	3.28×10^{-2}	0.81	1.09×10^{-2}	9.62×10^{-5}	0.99994
	4.75	1.32	3.06	3.47	2.94	3.58	1.24	1.61	9.79	2.71×10^{-2}	1.03	7.96×10^{-3}	2.09×10^{-4}	0.99987
	5.00	1.57	2.01	3.26	1.93	3.58	0.81	1.67	5.95	2.01×10^{-2}	0.50	5.86×10^{-3}	6.77×10^{-5}	0.99995
	5.50	0.00	6.00	3.13	5.87	2.98	1.66	1.57	12.76	1.31×10^{-2}	0.72	3.11×10^{-3}	2.13×10^{-4}	0.99984
	6.00	0.00	5.91	2.87	5.82	2.91	1.54	1.85	9.67	7.62×10^{-3}	0.39	1.68×10^{-3}	8.84×10^{-5}	0.99993
	6.50	0.00	13.02	2.66	12.91	2.81	3.09	2.18	15.06	4.30×10^{-3}	0.43	8.48×10^{-4}	1.46×10^{-4}	0.99988
	7.00	0	0	2.47	0.62	2.83	1.92	2.55	24.20	2.17×10^{-3}	0.24	3.98×10^{-4}	5.58×10^{-4}	0.99949

Table S9: Fitting parameters for the Havriliak-Negami model for the frequency dependence of χ'' of $\mathbf{2}_{\text{open}}$ in the solution state in a 1000 Oe field.

Temperature		χ_{adia}		χ_{iso}		α		τ		Chisqr	RR
K		$\text{cm}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$		$\text{cm}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$				s			
		Value	Standard Error ($\times 10^{-1}$)	Value	Standard Error ($\times 10^{-1}$)	Value ($\times 10^{-1}$)	Standard Error ($\times 10^{-3}$)	Value ($\times 10^{-5}$)	Standard Error ($\times 10^{-6}$)		Value
0 Oe	1.85	2.57	2.05	11.48	2.12	2.27	7.49	12.26	4.26	4.32×10^{-3}	0.99988
	2.00	2.36	1.93	10.64	1.99	2.26	7.46	11.82	4.16	3.56×10^{-3}	0.99989
	2.15	2.24	1.74	9.85	1.80	2.25	7.18	11.53	3.95	2.77×10^{-3}	0.9999
	2.30	1.95	1.82	9.46	1.88	2.25	7.57	10.90	4.05	2.69×10^{-3}	0.99989
	2.45	2.04	1.73	8.64	1.78	2.19	7.92	10.93	4.17	2.48×10^{-3}	0.99988
	2.60	1.93	1.60	8.14	1.64	2.17	7.57	10.46	3.90	1.93×10^{-3}	0.9999
	2.75	1.99	1.45	7.53	1.49	2.12	7.45	10.43	3.78	1.60×10^{-3}	0.99991
	2.90	1.90	1.53	7.12	1.57	2.09	8.09	9.99	4.00	1.62×10^{-3}	0.9999
	3.05	1.99	1.28	6.60	1.31	2.09	7.23	9.84	3.55	1.10×10^{-3}	0.99992
	3.20	1.82	1.22	6.36	1.25	2.09	6.88	9.15	3.28	8.57×10^{-4}	0.99993
	3.35	1.44	1.38	6.38	1.41	2.12	7.23	8.19	3.30	8.40×10^{-4}	0.99993
	3.50	1.89	1.18	5.59	1.20	1.98	7.46	8.92	3.42	7.67×10^{-4}	0.99993
	3.75	2.05	1.04	4.93	1.06	1.87	7.53	8.99	3.38	6.21×10^{-4}	0.99994
	4.00	2.04	0.93	4.52	0.95	1.89	7.14	8.51	3.14	4.38×10^{-4}	0.99995
	4.25	1.60	1.06	4.58	1.08	1.87	7.22	7.28	2.97	3.85×10^{-4}	0.99995
	4.50	2.21	0.73	3.63	0.74	1.79	6.87	8.37	2.93	2.60×10^{-4}	0.99996
	4.75	1.74	0.89	3.80	0.90	1.77	7.19	7.10	2.87	2.56×10^{-4}	0.99996
	5.00	2.03	0.70	3.23	0.72	1.75	6.85	7.30	2.76	1.74×10^{-4}	0.99997
	5.50	1.95	0.84	2.84	0.85	1.51	9.05	7.02	3.41	2.28×10^{-4}	0.99995
	6.00	1.83	1.02	2.58	1.03	1.45	11.23	6.32	4.04	2.54×10^{-4}	0.99994
	6.50	1.75	1.02	2.33	1.03	1.43	11.74	5.79	4.09	2.01×10^{-4}	0.99995

Table S10: Fitting parameters for the Cole-Cole model for the frequency dependence of χ'' of $\mathbf{2}_{\text{close}}$ in the solution state in a 0 Oe field.

Temperature		χ_{adia}		χ_{iso}		β		α		τ		$\tau_{\text{corrected}}$	Chisqr	RR
K		$\text{cm}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$		$\text{cm}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$						s		s		
		Value ($\times 10^{-1}$)	Standard Error ($\times 10^{-2}$)	Value	Standard Error ($\times 10^{-2}$)	Value ($\times 10^{-1}$)	Standard Error ($\times 10^{-2}$)	Value ($\times 10^{-1}$)	Standard Error ($\times 10^{-3}$)	Value ($\times 10^{-2}$)	Standard Error ($\times 10^{-3}$)	Value	Value ($\times 10^{-4}$)	Value
1000 Oe	1.85	3.24	1.43	13.76	5.12	7.34	1.43	4.68	5.51	42.62	13.09	2.39×10^{-1}	2.52	0.99997
	2.00	2.62	1.54	12.73	4.40	6.65	1.30	4.42	5.86	43.03	12.47	2.07×10^{-1}	2.63	0.99996
	2.15	2.81	1.48	11.86	3.59	6.55	1.22	4.34	5.51	37.10	10.38	1.76×10^{-1}	2.33	0.99996
	2.30	2.98	1.85	11.19	3.87	6.50	1.50	4.28	6.69	31.62	11.14	1.49×10^{-1}	3.54	0.99994
	2.45	3.00	1.79	10.48	3.08	6.25	1.34	4.12	6.25	27.38	8.90	1.23×10^{-1}	3.14	0.99995
	2.60	3.00	2.04	9.87	2.95	6.12	1.45	4.02	6.81	22.67	8.21	9.97×10^{-2}	3.86	0.99993
	2.75	2.48	1.66	9.32	1.99	5.60	0.99	3.73	5.26	20.89	5.39	8.28×10^{-2}	2.27	0.99996
	2.90	2.47	2.15	8.82	2.30	5.47	1.21	3.61	6.48	17.16	5.54	6.67×10^{-2}	3.54	0.99993
	3.05	3.05	1.97	8.34	1.98	5.56	1.13	3.56	5.76	13.34	4.05	5.36×10^{-2}	2.93	0.99994
	3.20	2.69	2.31	7.93	2.19	5.22	1.17	3.33	6.42	11.59	3.75	4.37×10^{-2}	3.57	0.99993
	3.35	2.54	2.27	7.58	2.09	5.10	1.08	3.24	5.96	9.53	2.91	3.52×10^{-2}	3.05	0.99994
	3.50	2.09	3.34	7.27	3.03	4.85	1.44	3.10	8.27	8.22	3.43	2.88×10^{-2}	5.60	0.99988
	3.75	2.67	2.99	6.72	2.73	4.85	1.28	2.98	7.07	5.76	2.14	2.06×10^{-2}	3.99	0.99991
	4.00	2.70	2.92	6.28	2.69	4.71	1.18	2.86	6.47	4.29	1.49	1.50×10^{-2}	3.09	0.99993
	4.25	2.37	4.76	5.93	4.44	4.39	1.69	2.66	9.80	3.46	1.77	1.13×10^{-2}	6.22	0.99985
	4.50	0.53	4.58	5.75	4.34	3.82	1.24	2.40	8.15	2.96	1.18	8.34×10^{-3}	3.60	0.99991
	4.75	0.24	3.86	5.48	3.69	3.65	0.96	2.34	6.29	2.36	0.74	6.33×10^{-3}	1.86	0.99995
	5.00	1.00	4.21	5.14	4.05	3.64	1.06	2.29	6.63	1.82	0.62	4.90×10^{-3}	1.84	0.99995
	5.50	0.00	5.15	4.78	5.03	3.22	1.04	2.13	6.61	1.23	0.43	2.92×10^{-3}	1.32	0.99996
	6.00	0.00	13.76	4.39	13.5	3.04	2.51	2.17	14.45	0.79	0.66	1.73×10^{-3}	4.62	0.99984
	6.50	0.00	17.58	4.07	17.39	3.00	3.08	2.45	14.02	0.48	0.48	9.65×10^{-4}	3.17	0.99988
	7.00	0.00	24.27	3.78	24.11	2.54	3.35	2.31	15.49	0.37	0.41	6.25×10^{-4}	2.44	0.9999
	7.50	0	0	3.53	0.67	2.56	1.44	2.62	19.89	0.21	0.20	3.34×10^{-4}	6.37	0.99972
	8.00	0	0	3.31	0.41	2.02	0.90	2.30	16.63	0.19	0.13	2.35×10^{-4}	2.63	0.99988

Table S11: Fitting parameters for the Havriliak-Negami model for the frequency dependence of χ'' of $\mathbf{2}_{\text{close}}$ in the solution state in a 1000 Oe field.