

Orbital Entanglement Analysis of Exchange-Coupled Systems

Supporting Information

Christopher J. Stein,^{a,*} Dimitrios A. Pantazis,^{b,*} Vera Krewald^{c,*}

^a Department of Chemistry, University of California, Berkeley, California 94720, USA and
Chemical Sciences Division, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, California
94720, USA.

^b Max-Planck-Institut für Kohlenforschung, Kaiser-Wilhelm-Platz 1, 45470 Mülheim an der
Ruhr, Germany.

^c Technische Universität Darmstadt, Fachbereich Chemie, Theoretische Chemie, Alarich-
Weiss-Str. 4, 64287 Darmstadt, Germany.

AUTHOR INFORMATION

Corresponding Authors

*E-mail: cjstein@lbl.gov

*E-mail: dimitrios.pantazis@kofo.mpg.de.

*E-mail: krewald@chemie.tu-darmstadt.de

Content

Mn₂(μ-O)₂(NH₃)₈⁴⁺

Figure S1. Active space orbitals of the bis-μ-oxo dimer from the Pipek-Mezey localization procedure with a small basis set. p. 05

Figure S2. Entanglement diagram based on localized orbitals with a small basis set including the O 2s orbitals. p. 06

Table S1: Single orbital entropies for all four spin-states of the bis-μ-oxo dimer calculated from a DMRG-CI calculation in a localized minimal basis set. p. 07

Table S2: Mutual information matrix for the singlet spin state of the bis-μ-oxo dimer calculated from a DMRG-CI calculation in a localized minimal basis set. p. 08

Table S3: Mutual information matrix for the triplet spin state of the bis-μ-oxo dimer calculated from a DMRG-CI calculation in a localized minimal basis set. p. 09

Table S4: Mutual information matrix for the quintet spin state of the bis-μ-oxo dimer calculated from a DMRG-CI calculation in a localized minimal basis set. p. 10

Table S5: Mutual information matrix for the septet spin state of the bis-μ-oxo dimer calculated from a DMRG-CI calculation in a localized minimal basis set. p. 11

Figure S3. Entanglement diagram for the bis-μ-oxo bridged dimer based on localized (left) orbitals in a minimal basis set and optimized (right) orbitals with a larger triple-ζ basis set. p. 12

Figure S4. Active space orbitals of the bis-μ-oxo dimer from optimization for the singlet state with a triple-ζ basis set. p. 13

Table S6: Single-orbital entropies for all four spin-states of the bis-μ-oxo dimer calculated from a DMRG-SCF optimized triple-ζ basis set. p. 14

Table S7: Mutual information matrix for the singlet spin state of the bis-μ-oxo dimer calculated from a DMRG-SCF optimized triple-ζ basis set. p. 15

Table S8: Mutual information matrix for the triplet spin state of the bis-μ-oxo dimer calculated from a DMRG-SCF optimized triple-ζ basis set. p. 16

Table S9: Mutual information matrix for the quintet spin state of the bis-μ-oxo dimer calculated from a DMRG-SCF optimized triple-ζ basis set. p. 17

Table S10: Mutual information matrix for the septet spin state of the bis-μ-oxo dimer calculated from a DMRG-SCF optimized triple-ζ basis set. p. 18

Mn₂(μ-O)(μ-OH)(NH₃)₈⁵⁺

Figure S5. Active space orbitals of the μ-oxo-μ-hydroxo from Pipek-Mezey localization with a small basis set. p. 19

Table S2: Single-orbital entropies for all four spin-states of the μ-oxo-μ-hydroxo dimer calculated from a DMRG-CI calculation in a localized minimal basis set. p. 20

Table S3: Mutual information matrix for the singlet spin state of the μ-oxo-μ-hydroxo dimer calculated from a DMRG-CI calculation in a localized minimal basis set. p. 21

Table S4: Mutual information matrix for the triplet spin state of the μ-oxo-μ-hydroxo dimer calculated from a DMRG-CI calculation in a localized minimal basis set. p. 22

Table S5: Mutual information matrix for the quintet spin state of the μ -oxo- μ -hydroxo dimer calculated from a DMRG-CI calculation in a localized minimal basis set. p. 23

Table S6: Mutual information matrix for the septet spin state of the μ -oxo- μ -hydroxo dimer calculated from a DMRG-CI calculation in a localized minimal basis set. p. 24

Figure S6. Active space orbitals of the μ -oxo- μ -hydroxo dimer from orbital optimization for the singlet state with a large basis set. p. 25

Figure S7. Entanglement diagram of the μ -oxo- μ -hydroxo dimer based on optimized orbitals with a triple- ζ basis set. p. 26

Figure S8. Entanglement diagram for the μ -oxo- μ -hydroxo dimer based on localized (left) orbitals in a minimal basis set and optimized (right) orbitals with a larger triple- ζ basis set.

p. 27

Table S7: Single-orbital entropies for all four spin-states of the μ -oxo- μ -hydroxo dimer calculated from a DMRG-SCF optimized triple- ζ basis set. p. 28

Table S8: Mutual information matrix for the singlet spin state of the μ -oxo- μ -hydroxo dimer calculated from a DMRG-SCF optimized triple- ζ basis set. p. 29

Table S9: Mutual information matrix for the triplet spin state of the μ -oxo- μ -hydroxo dimer calculated from a DMRG-SCF optimized triple- ζ basis set. p. 30

Table S10: Mutual information matrix for the quintet spin state of the μ -oxo- μ -hydroxo dimer calculated from a DMRG-SCF optimized triple- ζ basis set. p. 31

Table S11: Mutual information matrix for the septet spin state of the μ -oxo- μ -hydroxo dimer calculated from a DMRG-SCF optimized triple- ζ basis set. p. 32

Mn₂(μ-O)₃(NH₃)₆²⁺

Figure S9. Active space orbitals of the tris- μ -oxo dimer from Pipek-Mezey localization with a small basis set. p. 33

Table S12: Single-orbital entropies for all four spin-states of the tris- μ -oxo dimer calculated from a DMRG-CI calculation in a localized minimal basis set. p. 34

Table S13: Mutual information matrix for the singlet spin state of the tris- μ -oxo dimer calculated from a DMRG-CI calculation in a localized minimal basis set. p. 35

Table S14: Mutual information matrix for the triplet spin state of the tris- μ -oxo dimer calculated from a DMRG-CI calculation in a localized minimal basis set. p. 36

Table S15: Mutual information matrix for the quintet spin state of the tris- μ -oxo dimer calculated from a DMRG-CI calculation in a localized minimal basis set. p. 37

Table S16: Mutual information matrix for the septet spin state of the tris- μ -oxo dimer calculated from a DMRG-CI calculation in a localized minimal basis set. p. 38

Figure S10. Active space orbitals of the tris- μ -oxo dimer from orbital optimization for the singlet state with a large basis set. p. 39

Figure S11. Entanglement diagram of the tris- μ -oxo dimer based on localized (left) orbitals in a minimal basis set and optimized (right) orbitals with a larger triple- ζ basis set. p. 40

Table S17: Single-orbital entropies for all four spin-states of the tris- μ -oxo dimer calculated from a DMRG-SCF optimized triple- ζ basis set. p. 41

Table S18: Mutual information matrix for the singlet spin state of the tris- μ -oxo dimer calculated from a DMRG-SCF optimized triple- ζ basis set. p. 42

Table S19: Mutual information matrix for the triplet spin state of the tris- μ -oxo dimer calculated from a DMRG-SCF optimized triple- ζ basis set. p. 43

Table S20: Mutual information matrix for the quintet spin state of the tris- μ -oxo dimer calculated from a DMRG-SCF optimized triple- ζ basis set. p. 44

Table S21: Mutual information matrix for the septet spin state of the tris- μ -oxo dimer calculated from a DMRG-SCF optimized triple- ζ basis set. p. 45

Additional technical information

Figure S12. 4d orbitals of the bis- μ -oxo dimer and entanglement diagram including the 4d orbitals. p. 46

Figure S13. Convergence of the DMRG-CI calculation in the localized minimal basis for for the bis- μ -oxo dimer with varying maximum bond dimension m . p. 47

Table S22. Natural orbital occupation numbers and DMRG-CI occupation numbers obtained from the localized minimal basis ordered according to increasing numbers in each subgroup. p.48

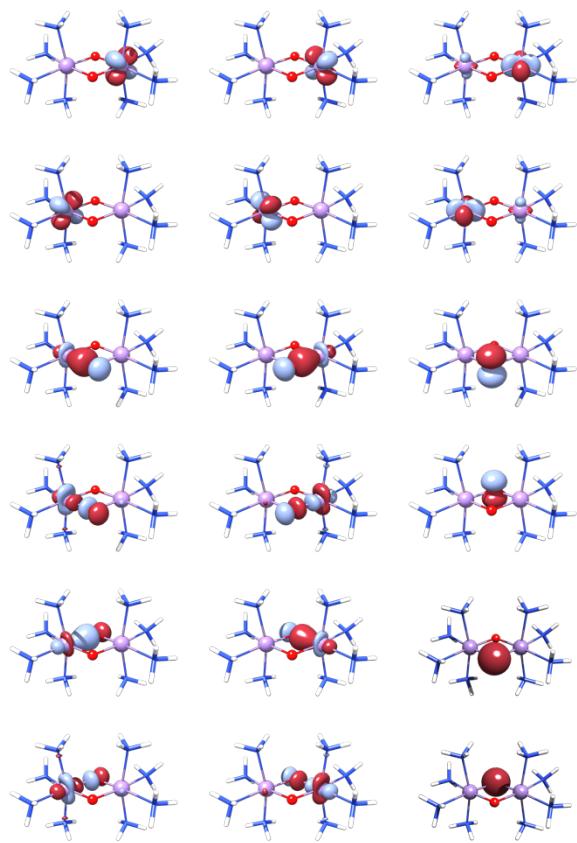


Figure S1. Active space orbitals of the bis- μ -oxo dimer from the Pipek-Mezey localization procedure with a small basis set. The O 2s orbitals are also shown.

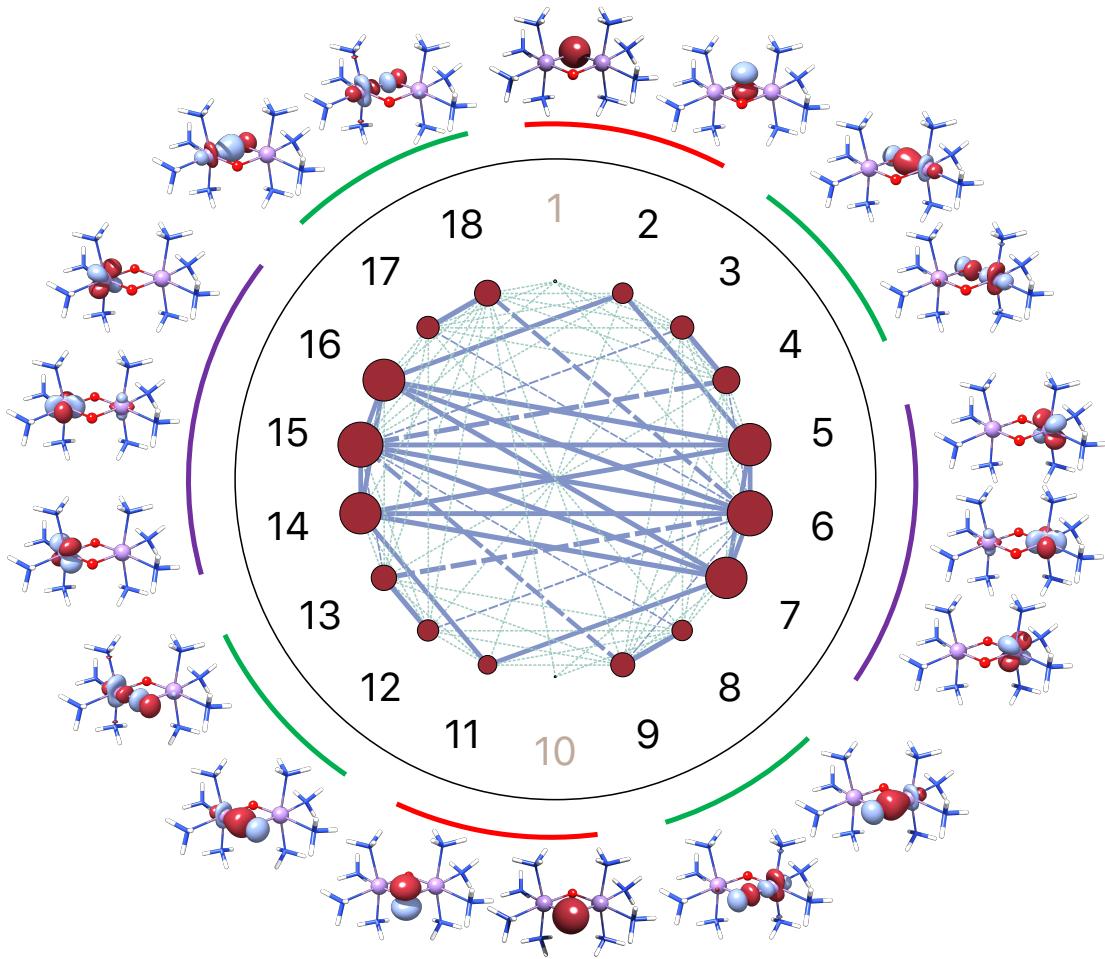


Figure S2. Entanglement diagram based on localized orbitals with a small basis set including the O 2s orbitals: the O 2s orbitals (orbital numbers: 1, 10) are not entangled and can hence be neglected.

Table S23: Single orbital entropies for all four spin-states of the bis- μ -oxo dimer calculated from a DMRG-CI calculation in a localized minimal basis set.

orbital	singlet	triplet	quintet	septet	Relative standard deviation
1	0.4463	0.3902	0.3565	0.3141	14.82
2	0.5056	0.5007	0.5124	0.5418	3.57
3	0.5863	0.5704	0.5618	0.5708	1.78
4	0.9196	0.8540	0.6792	0.2298	46.36
5	0.9805	0.8831	0.6102	0.2418	48.74
6	0.8979	0.8130	0.6334	0.2157	47.44
7	0.4442	0.4359	0.4459	0.4708	3.35
8	0.5242	0.5064	0.4983	0.5057	2.16
9	0.4044	0.3429	0.3090	0.2962	14.30
10	0.4624	0.4564	0.4643	0.4894	3.11
11	0.5505	0.5326	0.5214	0.5269	2.37
12	0.8963	0.8152	0.6394	0.2149	47.38
13	0.9785	0.8828	0.6075	0.2367	49.18
14	0.9108	0.8185	0.6555	0.2240	46.67
15	0.4855	0.4789	0.4926	0.5223	3.87
16	0.5622	0.5447	0.5406	0.5523	1.73

Table S24: Mutual information matrix for the singlet spin state of the bis- μ -oxo dimer calculated from a DMRG-CI calculation in a localized minimal basis set.

0.00000	0.00425	0.00485	0.13092	0.00050	0.00037	0.00016	0.00040	0.00152	0.00017	0.00040	0.00087	0.00102	0.12280	0.00383	0.00440
0.00425	0.00000	0.22100	0.00525	0.00544	0.00089	0.00564	0.00785	0.00017	0.00158	0.00043	0.00034	0.01878	0.00050	0.00463	0.00464
0.00485	0.22100	0.00000	0.00844	0.01001	0.00440	0.00610	0.00622	0.00040	0.00057	0.00126	0.00040	0.07944	0.00060	0.00489	0.00444
0.13092	0.00525	0.00844	0.00000	0.11640	0.12472	0.00073	0.00282	0.00045	0.00028	0.00032	0.15678	0.15403	0.19687	0.00047	0.00050
0.00050	0.00544	0.01001	0.11640	0.00000	0.11735	0.00294	0.01004	0.00056	0.01821	0.08174	0.15374	0.17679	0.15485	0.01344	0.06617
0.00037	0.00089	0.00440	0.12472	0.11735	0.00000	0.00448	0.00598	0.11768	0.00048	0.00059	0.20173	0.15347	0.15768	0.00035	0.00023
0.00016	0.00564	0.00610	0.00073	0.00294	0.00448	0.00000	0.20186	0.00389	0.00485	0.00383	0.00044	0.01308	0.00025	0.00147	0.00075
0.00040	0.00785	0.00622	0.00282	0.01004	0.00598	0.20186	0.00000	0.00426	0.00374	0.00480	0.00046	0.06666	0.00014	0.00054	0.00116
0.00152	0.00017	0.00040	0.00045	0.00056	0.11768	0.00389	0.00426	0.00000	0.00399	0.00437	0.11587	0.00065	0.00056	0.00016	0.00038
0.00017	0.00158	0.00057	0.00028	0.01821	0.00048	0.00485	0.00374	0.00399	0.00000	0.20734	0.00457	0.00340	0.00083	0.00562	0.00701
0.00040	0.00043	0.00126	0.00032	0.08174	0.00059	0.00383	0.00480	0.00437	0.20734	0.00000	0.00685	0.01078	0.00381	0.00766	0.00636
0.00087	0.00034	0.00040	0.15678	0.15374	0.20173	0.00044	0.00046	0.11587	0.00457	0.00685	0.00000	0.11757	0.12601	0.00076	0.00337
0.00102	0.01878	0.07944	0.15403	0.17679	0.15347	0.01308	0.06666	0.00065	0.00340	0.01078	0.11757	0.00000	0.11691	0.00555	0.00915
0.12280	0.00050	0.00060	0.19687	0.15485	0.15768	0.00025	0.00014	0.00056	0.00083	0.00381	0.12601	0.11691	0.00000	0.00486	0.00713
0.00383	0.00463	0.00489	0.00047	0.01344	0.00035	0.00147	0.00054	0.00016	0.00562	0.00766	0.00076	0.00555	0.00486	0.00000	0.21368
0.00440	0.00464	0.00444	0.00050	0.06617	0.00023	0.00075	0.00116	0.00038	0.00701	0.00636	0.00337	0.00915	0.00713	0.21368	0.00000

Table S25: Mutual information matrix for the triplet spin state of the bis- μ -oxo dimer calculated from a DMRG-CI calculation in a localized minimal basis set.

0.00000	0.00398	0.00468	0.12744	0.00068	0.00081	0.00015	0.00039	0.00115	0.00012	0.00027	0.00141	0.00163	0.09627	0.00294	0.00351
0.00398	0.00000	0.22700	0.00517	0.00516	0.00085	0.00599	0.00787	0.00013	0.00160	0.00055	0.00022	0.01519	0.00040	0.00555	0.00503
0.00468	0.22700	0.00000	0.00782	0.00856	0.00344	0.00620	0.00644	0.00032	0.00065	0.00092	0.00038	0.06719	0.00051	0.00526	0.00483
0.12744	0.00517	0.00782	0.00000	0.13307	0.14006	0.00080	0.00242	0.00067	0.00018	0.00034	0.14891	0.13963	0.17546	0.00040	0.00049
0.00068	0.00516	0.00856	0.13307	0.00000	0.13544	0.00281	0.00883	0.00067	0.01506	0.06945	0.14104	0.13857	0.14228	0.01152	0.05574
0.00081	0.00085	0.00344	0.14006	0.13544	0.00000	0.00381	0.00494	0.09859	0.00037	0.00053	0.17875	0.14103	0.15353	0.00023	0.00025
0.00015	0.00599	0.00620	0.00080	0.00281	0.00381	0.00000	0.20466	0.00317	0.00553	0.00440	0.00037	0.01086	0.00016	0.00151	0.00083
0.00039	0.00787	0.00644	0.00242	0.00883	0.00494	0.20466	0.00000	0.00362	0.00420	0.00488	0.00044	0.05782	0.00024	0.00066	0.00088
0.00115	0.00013	0.00032	0.00067	0.00067	0.09859	0.00317	0.00362	0.00000	0.00337	0.00385	0.10044	0.00061	0.00079	0.00014	0.00034
0.00012	0.00160	0.00065	0.00018	0.01506	0.00037	0.00553	0.00420	0.00337	0.00000	0.21314	0.00410	0.00329	0.00090	0.00609	0.00733
0.00027	0.00055	0.00092	0.00034	0.06945	0.00053	0.00440	0.00488	0.00385	0.21314	0.00000	0.00565	0.00944	0.00293	0.00784	0.00649
0.00141	0.00022	0.00038	0.14891	0.14104	0.17875	0.00037	0.00044	0.10044	0.00410	0.00565	0.00000	0.13527	0.14317	0.00086	0.00277
0.00163	0.01519	0.06719	0.13963	0.13857	0.14103	0.01086	0.05782	0.00061	0.00329	0.00944	0.13527	0.00000	0.13487	0.00538	0.00804
0.09627	0.00040	0.00051	0.17546	0.14228	0.15353	0.00016	0.00024	0.00079	0.00090	0.00293	0.14317	0.13487	0.00000	0.00392	0.00557
0.00294	0.00555	0.00526	0.00040	0.01152	0.00023	0.00151	0.00066	0.00014	0.00609	0.00784	0.00086	0.00538	0.00392	0.00000	0.21903
0.00351	0.00503	0.00483	0.00049	0.05574	0.00025	0.00083	0.00088	0.00034	0.00733	0.00649	0.00277	0.00804	0.00557	0.21903	0.00000

Table S26: Mutual information matrix for the quintet spin state of the bis- μ -oxo dimer calculated from a DMRG-CI calculation in a localized minimal basis set.

0.00000	0.00315	0.00401	0.11110	0.00131	0.00227	0.00010	0.00025	0.00081	0.00006	0.00020	0.00219	0.00152	0.09383	0.00262	0.00337
0.00315	0.00000	0.25844	0.00432	0.00432	0.00110	0.00635	0.00709	0.00008	0.00178	0.00120	0.00026	0.01141	0.00042	0.00684	0.00574
0.00401	0.25844	0.00000	0.00634	0.00735	0.00277	0.00584	0.00658	0.00023	0.00115	0.00067	0.00023	0.04546	0.00039	0.00593	0.00590
0.11110	0.00432	0.00634	0.00000	0.09466	0.12683	0.00106	0.00196	0.00165	0.00022	0.00022	0.11426	0.08148	0.13237	0.00044	0.00045
0.00131	0.00432	0.00735	0.09466	0.00000	0.09356	0.00244	0.00823	0.00105	0.01017	0.04945	0.08113	0.06583	0.08215	0.01002	0.03833
0.00227	0.00110	0.00277	0.12683	0.09356	0.00000	0.00332	0.00420	0.08909	0.00035	0.00037	0.12881	0.08119	0.11569	0.00026	0.00023
0.00010	0.00635	0.00584	0.00106	0.00244	0.00332	0.00000	0.23133	0.00263	0.00638	0.00516	0.00033	0.00815	0.00019	0.00171	0.00133
0.00025	0.00709	0.00658	0.00196	0.00823	0.00420	0.23133	0.00000	0.00324	0.00503	0.00523	0.00035	0.04140	0.00020	0.00133	0.00067
0.00081	0.00008	0.00023	0.00165	0.00105	0.08909	0.00263	0.00324	0.00000	0.00290	0.00355	0.09240	0.00096	0.00175	0.00009	0.00024
0.00006	0.00178	0.00115	0.00022	0.01017	0.00035	0.00638	0.00503	0.00290	0.00000	0.24053	0.00363	0.00273	0.00103	0.00635	0.00668
0.00020	0.00120	0.00067	0.00022	0.04945	0.00037	0.00516	0.00523	0.00355	0.24053	0.00000	0.00488	0.00869	0.00236	0.00690	0.00665
0.00219	0.00026	0.00023	0.11426	0.08113	0.12881	0.00033	0.00035	0.09240	0.00363	0.00488	0.00000	0.09359	0.12849	0.00103	0.00231
0.00152	0.01141	0.04546	0.08148	0.06583	0.08119	0.00815	0.04140	0.00096	0.00273	0.00869	0.09359	0.00000	0.09477	0.00452	0.00709
0.09383	0.00042	0.00039	0.13237	0.08215	0.11569	0.00019	0.00020	0.00175	0.00103	0.00236	0.12849	0.09477	0.00000	0.00366	0.00507
0.00262	0.00684	0.00593	0.00044	0.01002	0.00026	0.00171	0.00133	0.00009	0.00635	0.00690	0.00103	0.00452	0.00366	0.00000	0.24765
0.00337	0.00574	0.00590	0.00045	0.03833	0.00023	0.00133	0.00067	0.00024	0.00668	0.00665	0.00231	0.00709	0.00507	0.24765	0.00000

Table S27: Mutual information matrix for the septet spin state of the bis- μ -oxo dimer calculated from a DMRG-CI calculation in a localized minimal basis set.

0.00000	0.00271	0.00407	0.09872	0.00055	0.00017	0.00005	0.00004	0.00004	0.00005	0.00005	0.00010	0.00062	0.09547	0.00264	0.00396
0.00271	0.00000	0.31603	0.00657	0.00611	0.00566	0.00654	0.00663	0.00006	0.00227	0.00219	0.00027	0.01044	0.00024	0.00851	0.00693
0.00407	0.31603	0.00000	0.00798	0.00898	0.00691	0.00556	0.00714	0.00007	0.00197	0.00119	0.00047	0.02794	0.00032	0.00710	0.00812
0.09872	0.00657	0.00798	0.00000	0.00324	0.00412	0.00442	0.00503	0.00008	0.00020	0.00026	0.00050	0.00190	0.01140	0.00024	0.00034
0.00055	0.00611	0.00898	0.00324	0.00000	0.00320	0.00394	0.01045	0.00064	0.00802	0.03364	0.00192	0.00922	0.00181	0.01049	0.02430
0.00017	0.00566	0.00691	0.00412	0.00320	0.00000	0.00544	0.00610	0.09323	0.00023	0.00027	0.01049	0.00188	0.00053	0.00029	0.00046
0.00005	0.00654	0.00556	0.00442	0.00394	0.00544	0.00000	0.27900	0.00289	0.00721	0.00605	0.00021	0.00731	0.00020	0.00215	0.00203
0.00004	0.00663	0.00714	0.00503	0.01045	0.00610	0.27900	0.00000	0.00407	0.00588	0.00618	0.00024	0.02844	0.00024	0.00231	0.00120
0.00004	0.00006	0.00007	0.00008	0.00064	0.09323	0.00289	0.00407	0.00000	0.00303	0.00426	0.09305	0.00056	0.00010	0.00006	0.00007
0.00005	0.00227	0.00197	0.00020	0.00802	0.00023	0.00721	0.00588	0.00303	0.00000	0.29253	0.00574	0.00418	0.00467	0.00646	0.00616
0.00005	0.00219	0.00119	0.00026	0.03364	0.00027	0.00605	0.00618	0.00426	0.29253	0.00000	0.00658	0.01075	0.00550	0.00633	0.00705
0.00010	0.00027	0.00047	0.00050	0.00192	0.01049	0.00021	0.00024	0.09305	0.00574	0.00658	0.00000	0.00312	0.00416	0.00520	0.00622
0.00062	0.01044	0.02794	0.00190	0.00922	0.00188	0.00731	0.02844	0.00056	0.00418	0.01075	0.00312	0.00000	0.00307	0.00615	0.00865
0.09547	0.00024	0.00032	0.01140	0.00181	0.00053	0.00020	0.00024	0.00010	0.00467	0.00550	0.00416	0.00307	0.00000	0.00621	0.00735
0.00264	0.00851	0.00710	0.00024	0.01049	0.00029	0.00215	0.00231	0.00006	0.00646	0.00633	0.00520	0.00615	0.00621	0.00000	0.29949
0.00396	0.00693	0.00812	0.00034	0.02430	0.00046	0.00203	0.00120	0.00007	0.00616	0.00705	0.00622	0.00865	0.00735	0.29949	0.00000

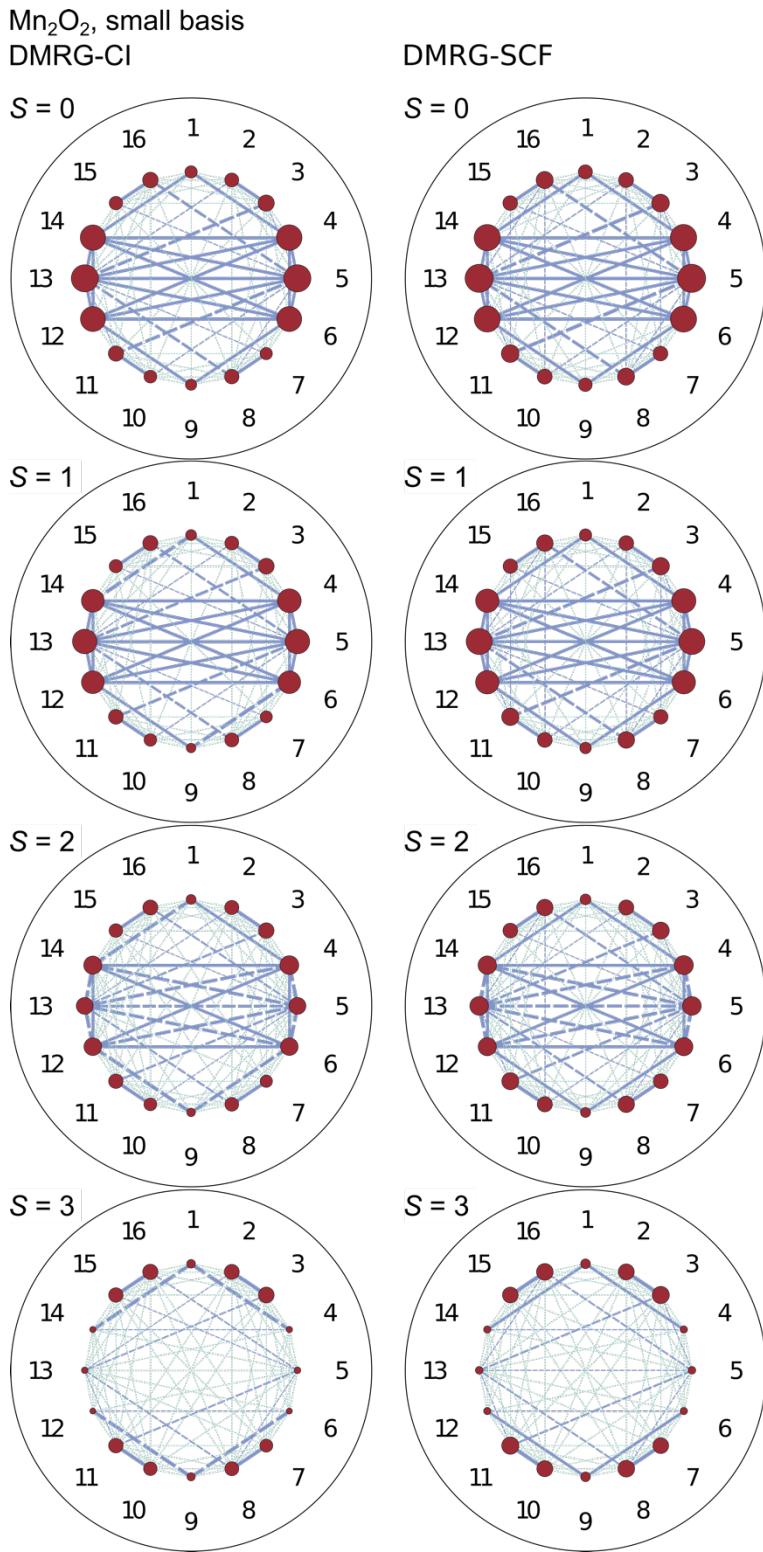


Figure S3. Entanglement diagram for the bis- μ -oxo bridged dimer based on localized (left) orbitals in a minimal basis set and optimized (right) orbitals with a larger triple- ζ basis set.

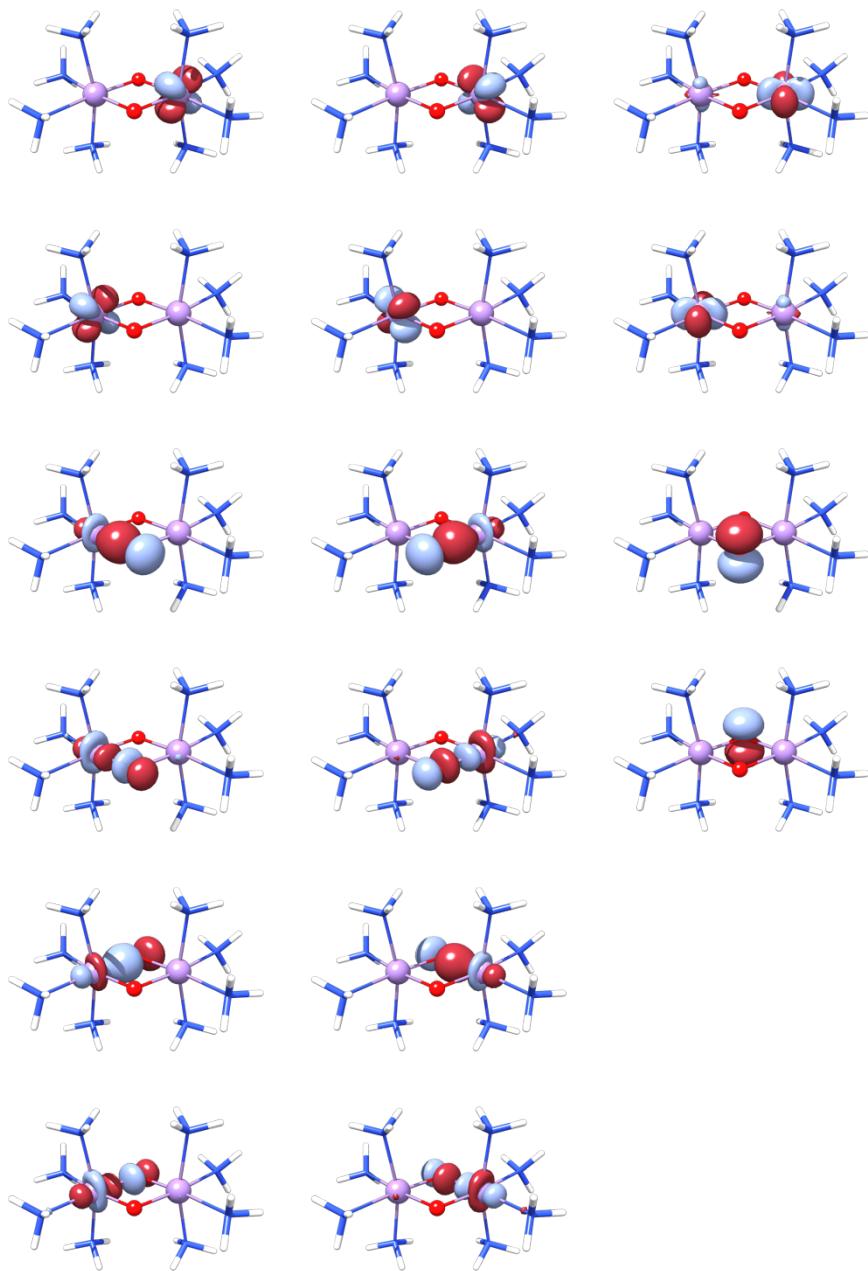


Figure S4. Active space orbitals of the bis- μ -oxo dimer from optimization for the singlet state with a triple- ζ basis set.

Table S28: Single-orbital entropies for all four spin-states of the bis- μ -oxo dimer calculated from a DMRG-SCF optimized triple- ζ basis set.

orbital	singlet	triplet	quintet	septet	Relative standard deviation
1	0.34460	0.29322	0.26629	0.26598	12.65
2	0.55664	0.54938	0.54448	0.55452	0.99
3	0.67492	0.66425	0.65085	0.64396	2.08
4	0.86486	0.79217	0.60727	0.20361	48.00
5	1.00657	0.94768	0.74728	0.34022	39.63
6	0.86052	0.77325	0.58716	0.20468	48.00
7	0.54375	0.53599	0.53150	0.54376	1.13
8	0.64866	0.63883	0.62643	0.62115	1.95
9	0.33294	0.28123	0.25205	0.26485	12.56
10	0.55849	0.55223	0.54789	0.55641	0.85
11	0.67955	0.67003	0.65662	0.64850	2.08
12	0.85666	0.77631	0.59027	0.20168	48.14
13	1.00408	0.94694	0.74592	0.33947	39.63
14	0.86250	0.76911	0.58889	0.20518	47.92
15	0.54491	0.53744	0.53283	0.54380	1.05
16	0.65066	0.64074	0.62862	0.62240	1.98

Table S29: Mutual information matrix for the singlet spin state of the bis- μ -oxo dimer calculated from a DMRG-SCF optimized triple- ζ basis set.

0.00000	0.00268	0.00285	0.10480	0.00042	0.00071	0.00016	0.00022	0.00137	0.00014	0.00017	0.00085	0.00053	0.10164	0.00251	0.00277
0.00268	0.00000	0.22246	0.00265	0.00220	0.00054	0.01350	0.03315	0.00013	0.00159	0.00074	0.00100	0.01942	0.00101	0.00490	0.00250
0.00285	0.22246	0.00000	0.00731	0.01875	0.00702	0.03241	0.01856	0.00019	0.00076	0.00478	0.00117	0.09373	0.00129	0.00296	0.00466
0.10480	0.00265	0.00731	0.00000	0.11766	0.13001	0.00062	0.00580	0.00060	0.00101	0.00118	0.16201	0.15124	0.19185	0.00080	0.00087
0.00042	0.00220	0.01875	0.11766	0.00000	0.11753	0.00241	0.01636	0.00036	0.01975	0.09624	0.14951	0.17507	0.15173	0.01708	0.08027
0.00071	0.00054	0.00702	0.13001	0.11753	0.00000	0.00246	0.00597	0.10184	0.00101	0.00131	0.19539	0.14969	0.16191	0.00079	0.00069
0.00016	0.01350	0.03241	0.00062	0.00241	0.00246	0.00000	0.21329	0.00246	0.00499	0.00301	0.00080	0.01705	0.00081	0.00126	0.00062
0.00022	0.03315	0.01856	0.00580	0.01636	0.00597	0.21329	0.00000	0.00268	0.00252	0.00459	0.00083	0.08037	0.00072	0.00069	0.00416
0.00137	0.00013	0.00019	0.00060	0.00036	0.10184	0.00246	0.00268	0.00000	0.00252	0.00266	0.09815	0.00052	0.00096	0.00013	0.00020
0.00014	0.00159	0.00076	0.00101	0.01975	0.00101	0.00499	0.00252	0.00252	0.00000	0.22166	0.00242	0.00218	0.00056	0.01370	0.03410
0.00017	0.00074	0.00478	0.00118	0.09624	0.00131	0.00301	0.00459	0.00266	0.22166	0.00000	0.00728	0.01908	0.00718	0.03317	0.01894
0.00085	0.00100	0.00117	0.16201	0.14951	0.19539	0.00080	0.00083	0.09815	0.00242	0.00728	0.00000	0.11793	0.13095	0.00054	0.00561
0.00053	0.01942	0.09373	0.15124	0.17507	0.14969	0.01705	0.08037	0.00052	0.00218	0.01908	0.11793	0.00000	0.11787	0.00242	0.01676
0.10164	0.00101	0.00129	0.19185	0.15173	0.16191	0.00081	0.00072	0.00096	0.00056	0.00718	0.13095	0.11787	0.00000	0.00251	0.00604
0.00251	0.00490	0.00296	0.00080	0.01708	0.00079	0.00126	0.00069	0.00013	0.01370	0.03317	0.00054	0.00242	0.00251	0.00000	0.21337
0.00277	0.00250	0.00466	0.00087	0.08027	0.00069	0.00062	0.00416	0.00020	0.03410	0.01894	0.00561	0.01676	0.00604	0.21337	0.00000

Table S30: Mutual information matrix for the triplet spin state of the bis- μ -oxo dimer calculated from a DMRG-SCF optimized triple- ζ basis set.

0.00000	0.00249	0.00264	0.09811	0.00037	0.00106	0.00016	0.00020	0.00105	0.00012	0.00013	0.00111	0.00074	0.07912	0.00204	0.00233
0.00249	0.00000	0.22451	0.00276	0.00248	0.00060	0.01409	0.03431	0.00012	0.00165	0.00076	0.00066	0.01768	0.00068	0.00520	0.00269
0.00264	0.22451	0.00000	0.00658	0.01766	0.00587	0.03320	0.01885	0.00015	0.00077	0.00497	0.00152	0.09135	0.00152	0.00320	0.00505
0.09811	0.00276	0.00658	0.00000	0.13393	0.14736	0.00073	0.00515	0.00082	0.00068	0.00149	0.15127	0.14245	0.16771	0.00059	0.00114
0.00037	0.00248	0.01766	0.13393	0.00000	0.13497	0.00260	0.01562	0.00045	0.01800	0.09356	0.14170	0.15490	0.14293	0.01605	0.07857
0.00106	0.00060	0.00587	0.14736	0.13497	0.00000	0.00231	0.00498	0.08412	0.00069	0.00157	0.17033	0.14218	0.15327	0.00054	0.00109
0.00016	0.01409	0.03320	0.00073	0.00260	0.00231	0.00000	0.21624	0.00211	0.00530	0.00319	0.00060	0.01594	0.00056	0.00136	0.00067
0.00020	0.03431	0.01885	0.00515	0.01562	0.00498	0.21624	0.00000	0.00236	0.00278	0.00503	0.00107	0.07853	0.00108	0.00074	0.00427
0.00105	0.00012	0.00015	0.00082	0.00045	0.08412	0.00211	0.00236	0.00000	0.00216	0.00235	0.08585	0.00037	0.00125	0.00014	0.00019
0.00012	0.00165	0.00077	0.00068	0.01800	0.00069	0.00530	0.00278	0.00216	0.00000	0.22273	0.00238	0.00246	0.00062	0.01467	0.03629
0.00013	0.00076	0.00497	0.00149	0.09356	0.00157	0.00319	0.00503	0.00235	0.22273	0.00000	0.00617	0.01821	0.00604	0.03504	0.01959
0.00111	0.00066	0.00152	0.15127	0.14170	0.17033	0.00060	0.00107	0.08585	0.00238	0.00617	0.00000	0.13474	0.14940	0.00063	0.00480
0.00074	0.01768	0.09135	0.14245	0.15490	0.14218	0.01594	0.07853	0.00037	0.00246	0.01821	0.13474	0.00000	0.13503	0.00265	0.01598
0.07912	0.00068	0.00152	0.16771	0.14293	0.15327	0.00056	0.00108	0.00125	0.00062	0.00604	0.14940	0.13503	0.00000	0.00220	0.00489
0.00204	0.00520	0.00320	0.00059	0.01605	0.00054	0.00136	0.00074	0.00014	0.01467	0.03504	0.00063	0.00265	0.00220	0.00000	0.21476
0.00233	0.00269	0.00505	0.00114	0.07857	0.00109	0.00067	0.00427	0.00019	0.03629	0.01959	0.00480	0.01598	0.00489	0.21476	0.00000

Table S31: Mutual information matrix for the quintet spin state of the bis- μ -oxo dimer calculated from a DMRG-SCF optimized triple- ζ basis set.

0.00000	0.00237	0.00256	0.08819	0.00093	0.00163	0.00010	0.00012	0.00096	0.00009	0.00010	0.00147	0.00093	0.07445	0.00199	0.00230
0.00237	0.00000	0.24527	0.00276	0.00268	0.00076	0.01395	0.03417	0.00007	0.00188	0.00102	0.00041	0.01455	0.00048	0.00575	0.00330
0.00256	0.24527	0.00000	0.00540	0.01612	0.00487	0.03307	0.01773	0.00011	0.00102	0.00509	0.00099	0.08588	0.00100	0.00387	0.00634
0.08819	0.00276	0.00540	0.00000	0.10534	0.11827	0.00096	0.00440	0.00129	0.00045	0.00095	0.10599	0.09522	0.11613	0.00043	0.00081
0.00093	0.00268	0.01612	0.10534	0.00000	0.10489	0.00281	0.01443	0.00081	0.01469	0.08738	0.09548	0.10477	0.09583	0.01366	0.07511
0.00163	0.00076	0.00487	0.11827	0.10489	0.00000	0.00233	0.00421	0.07682	0.00047	0.00102	0.11647	0.09560	0.10726	0.00035	0.00074
0.00010	0.01395	0.03307	0.00096	0.00281	0.00233	0.00000	0.23647	0.00198	0.00589	0.00391	0.00042	0.01356	0.00037	0.00161	0.00093
0.00012	0.03417	0.01773	0.00440	0.01443	0.00421	0.23647	0.00000	0.00226	0.00340	0.00630	0.00075	0.07464	0.00075	0.00099	0.00425
0.00096	0.00007	0.00011	0.00129	0.00081	0.07682	0.00198	0.00226	0.00000	0.00208	0.00229	0.07763	0.00080	0.00153	0.00008	0.00012
0.00009	0.00188	0.00102	0.00045	0.01469	0.00047	0.00589	0.00340	0.00208	0.00000	0.24484	0.00242	0.00268	0.00082	0.01439	0.03575
0.00010	0.00102	0.00509	0.00095	0.08738	0.00102	0.00391	0.00630	0.00229	0.24484	0.00000	0.00504	0.01674	0.00503	0.03474	0.01828
0.00147	0.00041	0.00099	0.10599	0.09548	0.11647	0.00042	0.00075	0.07763	0.00242	0.00504	0.00000	0.10495	0.11958	0.00081	0.00411
0.00093	0.01455	0.08588	0.09522	0.10477	0.09560	0.01356	0.07464	0.00080	0.00268	0.01674	0.10495	0.00000	0.10533	0.00288	0.01500
0.07445	0.00048	0.00100	0.11613	0.09583	0.10726	0.00037	0.00075	0.00153	0.00082	0.00503	0.11958	0.10533	0.00000	0.00231	0.00419
0.00199	0.00575	0.00387	0.00043	0.01366	0.00035	0.00161	0.00099	0.00008	0.01439	0.03474	0.00081	0.00288	0.00231	0.00000	0.23586
0.00230	0.00330	0.00634	0.00081	0.07511	0.00074	0.00093	0.00425	0.00012	0.03575	0.01828	0.00411	0.01500	0.00419	0.23586	0.00000

Table S32: Mutual information matrix for the septet spin state of the bis- μ -oxo dimer calculated from a DMRG-SCF optimized triple- ζ basis set.

0.00000	0.00272	0.00308	0.08594	0.00009	0.00022	0.00019	0.00003	0.00009	0.00021	0.00003	0.00014	0.00010	0.08737	0.00260	0.00304
0.00272	0.00000	0.29502	0.00458	0.00445	0.00471	0.01254	0.03054	0.00020	0.00247	0.00170	0.00025	0.01155	0.00032	0.00674	0.00454
0.00308	0.29502	0.00000	0.00602	0.01739	0.00761	0.02971	0.01433	0.00003	0.00168	0.00532	0.00030	0.07789	0.00044	0.00513	0.00799
0.08594	0.00458	0.00602	0.00000	0.00326	0.00520	0.00516	0.00755	0.00013	0.00026	0.00031	0.00028	0.00020	0.00871	0.00028	0.00042
0.00009	0.00445	0.01739	0.00326	0.00000	0.00320	0.00475	0.01583	0.00010	0.01151	0.07922	0.00020	0.02313	0.00021	0.01139	0.06817
0.00022	0.00471	0.00761	0.00520	0.00320	0.00000	0.00467	0.00583	0.08741	0.00032	0.00044	0.00872	0.00020	0.00033	0.00027	0.00028
0.00019	0.01254	0.02971	0.00516	0.00475	0.00467	0.00000	0.28594	0.00259	0.00681	0.00517	0.00028	0.01129	0.00027	0.00219	0.00156
0.00003	0.03054	0.01433	0.00755	0.01583	0.00583	0.28594	0.00000	0.00306	0.00456	0.00797	0.00041	0.06733	0.00028	0.00163	0.00417
0.00009	0.00020	0.00003	0.00013	0.00010	0.08741	0.00259	0.00306	0.00000	0.00269	0.00304	0.08505	0.00009	0.00023	0.00019	0.00003
0.00021	0.00247	0.00168	0.00026	0.01151	0.00032	0.00681	0.00456	0.00269	0.00000	0.29606	0.00456	0.00452	0.00475	0.01256	0.03086
0.00003	0.00170	0.00532	0.00031	0.07922	0.00044	0.00517	0.00797	0.00304	0.29606	0.00000	0.00600	0.01820	0.00768	0.03023	0.01445
0.00014	0.00025	0.00030	0.00028	0.00020	0.00872	0.00028	0.00041	0.08505	0.00456	0.00600	0.00000	0.00319	0.00529	0.00499	0.00739
0.00010	0.01155	0.07789	0.00020	0.02313	0.00020	0.01129	0.06733	0.00009	0.00452	0.01820	0.00319	0.00000	0.00320	0.00478	0.01660
0.08737	0.00032	0.00044	0.00871	0.00021	0.00033	0.00027	0.00028	0.00023	0.00475	0.00768	0.00529	0.00320	0.00000	0.00469	0.00579
0.00260	0.00674	0.00513	0.00028	0.01139	0.00027	0.00219	0.00163	0.00019	0.01256	0.03023	0.00499	0.00478	0.00469	0.00000	0.28555
0.00304	0.00454	0.00799	0.00042	0.06817	0.00028	0.00156	0.00417	0.00003	0.03086	0.01445	0.00739	0.01660	0.00579	0.28555	0.00000

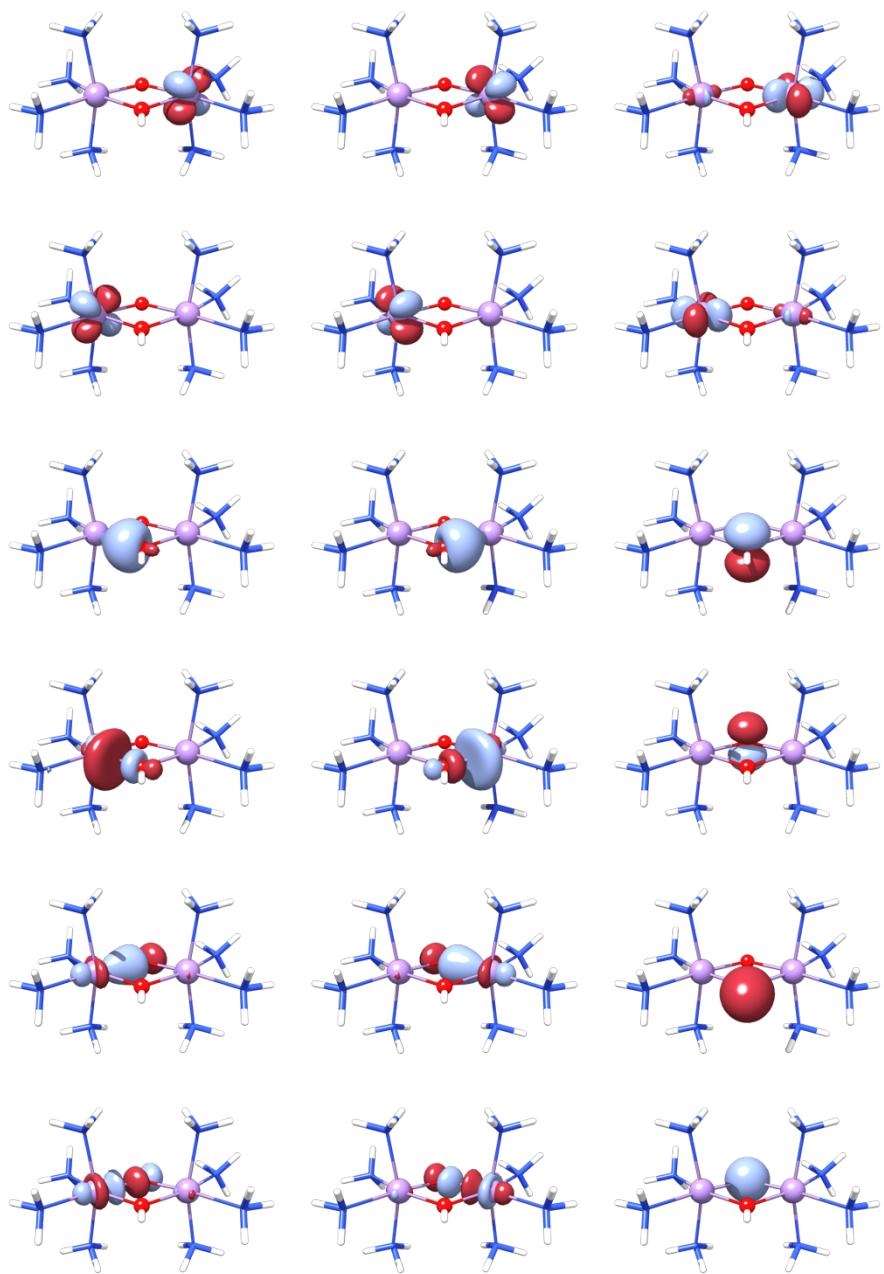


Figure S5. Active space orbitals of the μ -oxo- μ -hydroxo from Pipek-Mezey localization with a small basis set.

Table S33: Single-orbital entropies for all four spin-states of the μ -oxo- μ -hydroxo dimer calculated from a DMRG-CI calculation in a localized minimal basis set.

orbital	singlet	triplet	quintet	septet	Relative standard deviation
1	0.36999	0.34452	0.30925	0.23562	18.55
2	0.40183	0.40470	0.41497	0.42636	2.70
3	0.46968	0.46362	0.45830	0.45184	1.65
4	0.87590	0.81669	0.63859	0.15163	52.94
5	0.94295	0.84902	0.59532	0.15750	55.22
6	0.75017	0.69004	0.50369	0.06994	61.07
7	0.14345	0.13965	0.13598	0.13249	3.42
8	0.16301	0.15985	0.15833	0.15782	1.46
9	0.10215	0.09630	0.09262	0.08588	7.23
10	0.14079	0.13699	0.13343	0.13010	3.40
11	0.15974	0.15649	0.15507	0.15466	1.47
12	0.74869	0.68850	0.50345	0.06911	61.13
13	0.95077	0.85463	0.59785	0.16215	54.96
14	0.87792	0.81937	0.64324	0.15489	52.60
15	0.39743	0.39998	0.41042	0.42198	2.75
16	0.46458	0.45841	0.45360	0.44758	1.58

Table S34: Mutual information matrix for the singlet spin state of the μ -oxo- μ -hydroxo dimer calculated from a DMRG-CI calculation in a localized minimal basis set.

0.00000	0.00645	0.00621	0.10899	0.00068	0.00164	0.00009	0.00016	0.00034	0.00008	0.00015	0.00129	0.00062	0.11095	0.00668	0.00639
0.00645	0.00000	0.16766	0.00824	0.00367	0.00127	0.00588	0.00621	0.00035	0.00063	0.00297	0.00009	0.04376	0.00052	0.00671	0.00662
0.00621	0.16766	0.00000	0.00941	0.01961	0.00328	0.00234	0.01808	0.00025	0.00049	0.00383	0.00020	0.08499	0.00053	0.00658	0.01324
0.10899	0.00824	0.00941	0.00000	0.12177	0.13501	0.00042	0.00021	0.00017	0.00016	0.00006	0.17599	0.15979	0.20608	0.00051	0.00049
0.00068	0.00367	0.01961	0.12177	0.00000	0.12734	0.00185	0.00439	0.00014	0.01078	0.00998	0.17073	0.21316	0.16008	0.04147	0.08138
0.00164	0.00127	0.00328	0.13501	0.12734	0.00000	0.00128	0.00110	0.02983	0.00042	0.00026	0.19877	0.16992	0.17600	0.00010	0.00015
0.00009	0.00588	0.00234	0.00042	0.00185	0.00128	0.00000	0.04461	0.00132	0.00928	0.00570	0.00042	0.01103	0.00016	0.00063	0.00050
0.00016	0.00621	0.01808	0.00021	0.00439	0.00110	0.04461	0.00000	0.00160	0.00566	0.00592	0.00026	0.01063	0.00006	0.00299	0.00382
0.00034	0.00035	0.00025	0.00017	0.00014	0.02983	0.00132	0.00160	0.00000	0.00128	0.00156	0.02942	0.00015	0.00017	0.00034	0.00025
0.00008	0.00063	0.00049	0.00016	0.01078	0.00042	0.00928	0.00566	0.00128	0.00000	0.04367	0.00124	0.00181	0.00041	0.00557	0.00231
0.00015	0.00297	0.00383	0.00006	0.00998	0.00026	0.00570	0.00592	0.00156	0.04367	0.00000	0.00106	0.00450	0.00020	0.00621	0.01740
0.00129	0.00009	0.00020	0.17599	0.17073	0.19877	042	0.00026	0.02942	0.00124	0.00106	0.00000	0.12660	0.13487	0.00115	0.00299
0.00062	0.04376	0.08499	0.15979	0.21316	0.16992	0.01103	0.01063	0.00015	0.00181	0.00450	0.12660	0.00000	0.12089	0.00348	0.01987
0.11095	0.00052	0.00053	0.20608	0.16008	0.17600	0.00016	0.00006	0.00017	0.00041	0.00020	0.13487	0.12089	0.00000	0.00838	0.00935
0.00668	0.00671	0.00658	0.00051	0.04147	0.00010	0.00063	0.00299	0.00034	0.00557	0.00621	0.00115	0.00348	0.00838	0.00000	0.16806
0.00639	0.00662	0.01324	0.00049	0.08138	0.00015	0.00050	0.00382	0.00025	0.00231	0.01740	0.00299	0.01987	0.00935	0.16806	0.00000

Table S35: Mutual information matrix for the triplet spin state of the μ -oxo- μ -hydroxo dimer calculated from a DMRG-CI calculation in a localized minimal basis set.

0.00000	0.00576	0.00575	0.10130	0.00078	0.00155	0.00007	0.00013	0.00028	0.00007	0.00013	0.00128	0.00075	0.10309	0.00595	0.00590
0.00576	0.00000	0.17548	0.00736	0.00351	0.00122	0.00571	0.00678	0.00031	0.00055	0.00294	0.00011	0.03589	0.00046	0.00792	0.00722
0.00575	0.17548	0.00000	0.00845	0.01741	0.00274	0.00272	0.01780	0.00023	0.00049	0.00359	0.00027	0.07439	0.00053	0.00717	0.01277
0.10130	0.00736	0.00845	0.00000	0.13979	0.15050	0.00037	0.00019	0.00017	0.00014	0.00005	0.16519	0.14870	0.19062	0.00045	0.00048
0.00078	0.00351	0.01741	0.13979	0.00000	0.14735	0.00164	0.00391	0.00016	0.00933	0.00881	0.15455	0.17272	0.14989	0.03414	0.07149
0.00155	0.00112	0.00274	0.15050	0.14735	0.00000	0.00123	0.00109	0.02872	0.00040	0.00025	0.17693	0.15296	0.16497	0.00011	0.00022
0.00007	0.00571	0.00272	0.00037	0.00164	0.00123	0.00000	0.04440	0.00130	0.00925	0.00575	0.00039	0.00949	0.00014	0.00055	0.00050
0.00013	0.00678	0.01780	0.00019	0.00391	0.00109	0.04440	0.00000	0.00156	0.00572	0.00583	0.00024	0.00938	0.00005	0.00295	0.00357
0.00028	0.00031	0.00023	0.00017	0.00016	0.02872	0.00130	0.00156	0.00000	0.00125	0.00151	0.02742	0.00018	0.00017	0.00030	0.00022
0.00007	0.00055	0.00049	0.00014	0.00933	0.00040	0.00925	0.00572	0.00125	0.00000	0.04341	0.00117	0.00161	0.00036	0.00541	0.00265
0.00013	0.00294	0.00359	0.00005	0.00881	0.00025	0.00575	0.00583	0.00151	0.04341	0.00000	0.00101	0.00402	0.00018	0.00671	0.01714
0.00128	0.00011	0.00027	0.16519	0.15455	0.17693	0.00039	0.00024	0.02747	0.00117	0.00101	0.00000	0.14673	0.15039	0.00101	0.00251
0.00075	0.03589	0.07439	0.14870	0.17272	0.15296	0.00949	0.00938	0.00018	0.00161	0.00402	0.14673	0.00000	0.13890	0.00342	0.01768
0.10309	0.00046	0.00053	0.19062	0.14989	0.16497	0.00014	0.00005	0.00017	0.00036	0.00018	0.15039	0.13890	0.00000	0.00751	0.00844
0.00595	0.00792	0.00717	0.00045	0.03414	0.00011	0.00055	0.00295	0.00030	0.00541	0.00671	0.00101	0.00342	0.00751	0.00000	0.17550
0.00590	0.00722	0.01277	0.00048	0.07149	0.00022	0.00050	0.00357	0.00022	0.00265	0.01714	0.00251	0.01768	0.00844	0.17550	0.00000

Table S36: Mutual information matrix for the quintet spin state of the μ -oxo- μ -hydroxo dimer calculated from a DMRG-CI calculation in a localized minimal basis set.

0.00000	0.00482	0.00516	0.09073	0.00163	0.00239	0.00006	0.00011	0.00022	0.00006	0.00011	0.00219	0.00160	0.09315	0.00504	0.00535
0.00482	0.00000	0.19952	0.00632	0.00376	0.00107	0.00538	0.00876	0.00028	0.00046	0.00314	0.00011	0.02379	0.00037	0.01061	0.00889
0.00516	0.19952	0.00000	0.00724	0.01435	0.00217	0.00374	0.01742	0.00021	0.00052	0.00327	0.00014	0.05608	0.00034	0.00884	0.01236
0.09073	0.00632	0.00724	0.00000	0.11063	0.13109	0.00027	0.00019	0.00038	0.00009	0.00005	0.12367	0.10344	0.14433	0.00035	0.00033
0.00163	0.00376	0.01435	0.11063	0.00000	0.10653	0.00131	0.00320	0.00025	0.00670	0.00682	0.10045	0.09617	0.10529	0.02266	0.05429
0.00239	0.00101	0.00217	0.13109	0.10653	0.00000	0.00117	0.00109	0.02779	0.00035	0.00026	0.12126	0.09856	0.12363	0.00011	0.00013
0.00006	0.00538	0.00374	0.00027	0.00131	0.00117	0.00000	0.04632	0.00133	0.00941	0.00604	0.00035	0.00675	0.00010	0.00046	0.00053
0.00011	0.00876	0.01742	0.00019	0.00320	0.00109	0.04632	0.00000	0.00158	0.00602	0.00579	0.00026	0.00719	0.00005	0.00314	0.00325
0.00022	0.00028	0.00021	0.00038	0.00025	0.02779	0.00133	0.00158	0.00000	0.00129	0.00154	0.02721	0.00025	0.00036	0.00027	0.00020
0.00006	0.00046	0.00052	0.00009	0.00670	0.00035	0.00941	0.00602	0.00129	0.00000	0.04523	0.00112	0.00129	0.00027	0.00511	0.00361
0.00011	0.00314	0.00327	0.00005	0.00682	0.00026	0.00604	0.00579	0.00154	0.04523	0.00000	0.00105	0.00330	0.00018	0.00853	0.01677
0.00219	0.00011	0.00014	0.12367	0.10045	0.12126	0.00035	0.00026	0.02721	0.00112	0.00105	0.00000	0.10543	0.13197	0.00099	0.00205
0.00160	0.02379	0.05608	0.10344	0.09617	0.09856	0.00675	0.00719	0.00025	0.00129	0.00330	0.10543	0.00000	0.10943	0.00378	0.01464
0.09315	0.00037	0.00034	0.14433	0.10529	0.12363	0.00010	0.00005	0.00036	0.00027	0.00018	0.13197	0.10943	0.00000	0.00652	0.00733
0.00504	0.01061	0.00884	0.00035	0.02266	0.00011	0.00046	0.00314	0.00027	0.00511	0.00853	0.00099	0.00378	0.00652	0.00000	0.19860
0.00535	0.00889	0.01236	0.00033	0.05429	0.00013	0.00053	0.00325	0.00020	0.00361	0.01677	0.00205	0.01464	0.00733	0.19860	0.00000

Table S37: Mutual information matrix for the septet spin state of the μ -oxo- μ -hydroxo dimer calculated from a DMRG-CI calculation in a localized minimal basis set.

0.00000	0.00397	0.00477	0.07440	0.00067	0.00060	0.00007	0.00011	0.00003	0.00007	0.00011	0.00045	0.00070	0.07714	0.00418	0.00493
0.00397	0.00000	0.23938	0.00820	0.00664	0.00410	0.00500	0.01191	0.00026	0.00044	0.00357	0.00017	0.01631	0.00020	0.01472	0.01189
0.00477	0.23938	0.00000	0.00845	0.01308	0.00450	0.00530	0.01698	0.00021	0.00059	0.00298	0.00034	0.03960	0.00029	0.01186	0.01266
0.07440	0.00820	0.00845	0.00000	0.00100	0.00213	0.00035	0.00054	0.00009	0.00007	0.00006	0.00036	0.00212	0.00786	0.00018	0.00028
0.00067	0.00664	0.01308	0.00100	0.00000	0.00126	0.00128	0.00275	0.00016	0.00447	0.00487	0.00153	0.00772	0.00198	0.01538	0.03845
0.00060	0.00410	0.00450	0.00213	0.00126	0.00000	0.00143	0.00155	0.02715	0.00034	0.00030	0.00178	0.00163	0.00039	0.00015	0.00033
0.00007	0.00500	0.00530	0.00035	0.00128	0.00143	0.00000	0.04987	0.00146	0.00975	0.00659	0.00035	0.00452	0.00007	0.00044	0.00060
0.00011	0.01191	0.01698	0.00054	0.00275	0.00155	0.04987	0.00000	0.00171	0.00658	0.00588	0.00031	0.00510	0.00006	0.00356	0.00297
0.00003	0.00026	0.00021	0.00009	0.00016	0.02715	0.00146	0.00171	0.00000	0.00142	0.00168	0.02706	0.00017	0.00006	0.00026	0.00021
0.00007	0.00044	0.00059	0.00007	0.00447	0.00034	0.00975	0.00658	0.00142	0.00000	0.04867	0.00139	0.00128	0.00033	0.00476	0.00509
0.00011	0.00357	0.00298	0.00006	0.00487	0.00030	0.00659	0.00588	0.00168	0.04867	0.00000	0.00151	0.00282	0.00052	0.01146	0.01636
0.00045	0.00017	0.00034	0.00036	0.00153	0.00178	0.00035	0.00031	0.02706	0.00139	0.00151	0.00000	0.00124	0.00207	0.00401	0.00446
0.00070	0.01631	0.03960	0.00212	0.00772	0.00163	0.00452	0.00510	0.00017	0.00128	0.00282	0.00124	0.00000	0.00096	0.00672	0.01335
0.07714	0.00020	0.00029	0.00786	0.00198	0.00039	0.00007	0.00006	0.00006	0.00033	0.00052	0.00207	0.00096	0.00000	0.00835	0.00859
0.00418	0.01472	0.01186	0.00018	0.01538	0.00015	0.00044	0.00356	0.00026	0.00476	0.01146	0.00401	0.00672	0.00835	0.00000	0.23713
0.00493	0.01189	0.01266	0.00028	0.03845	0.00033	0.00060	0.00297	0.00021	0.00509	0.01636	0.00446	0.01335	0.00859	0.23713	0.00000

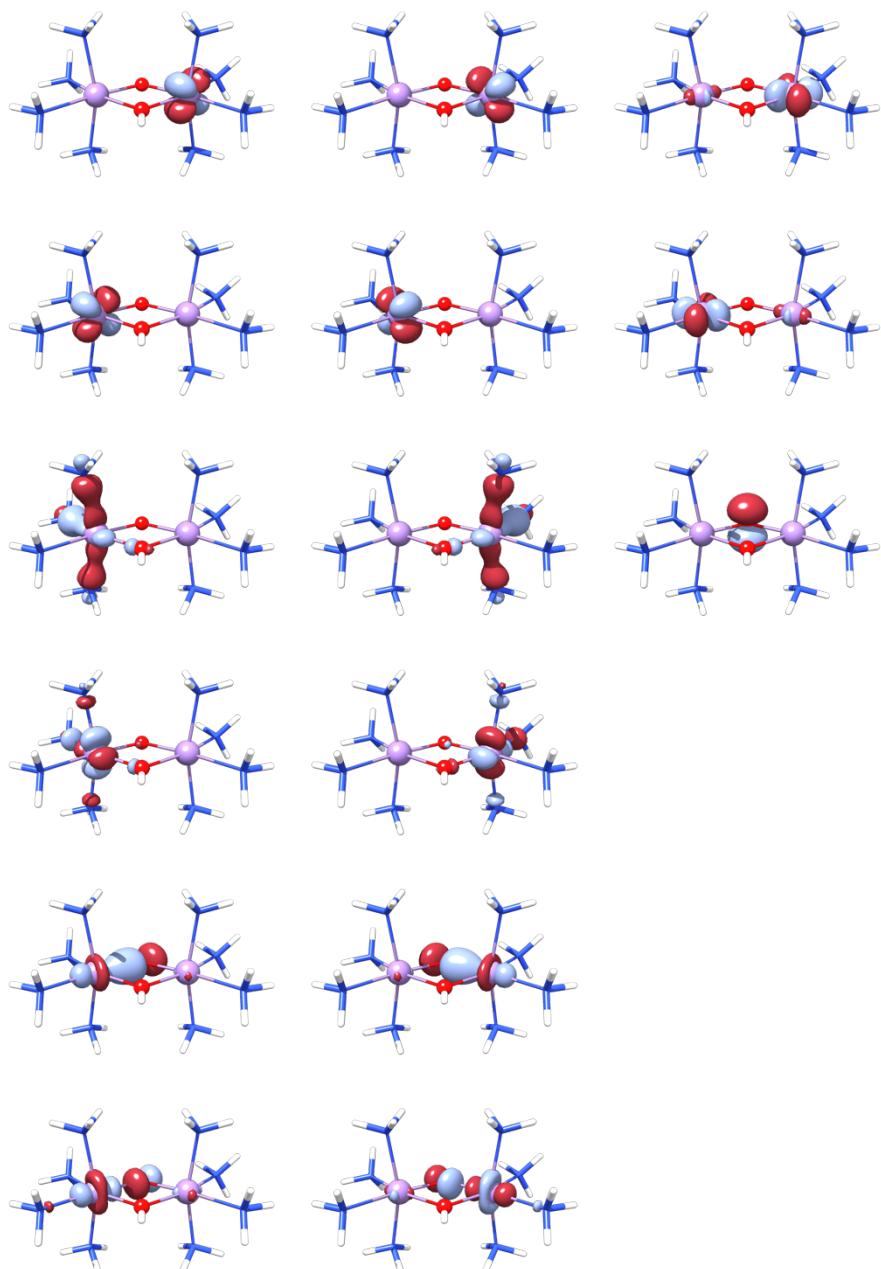


Figure S6. Active space orbitals of the μ -oxo- μ -hydroxo dimer from orbital optimization for the singlet state with a large basis set.

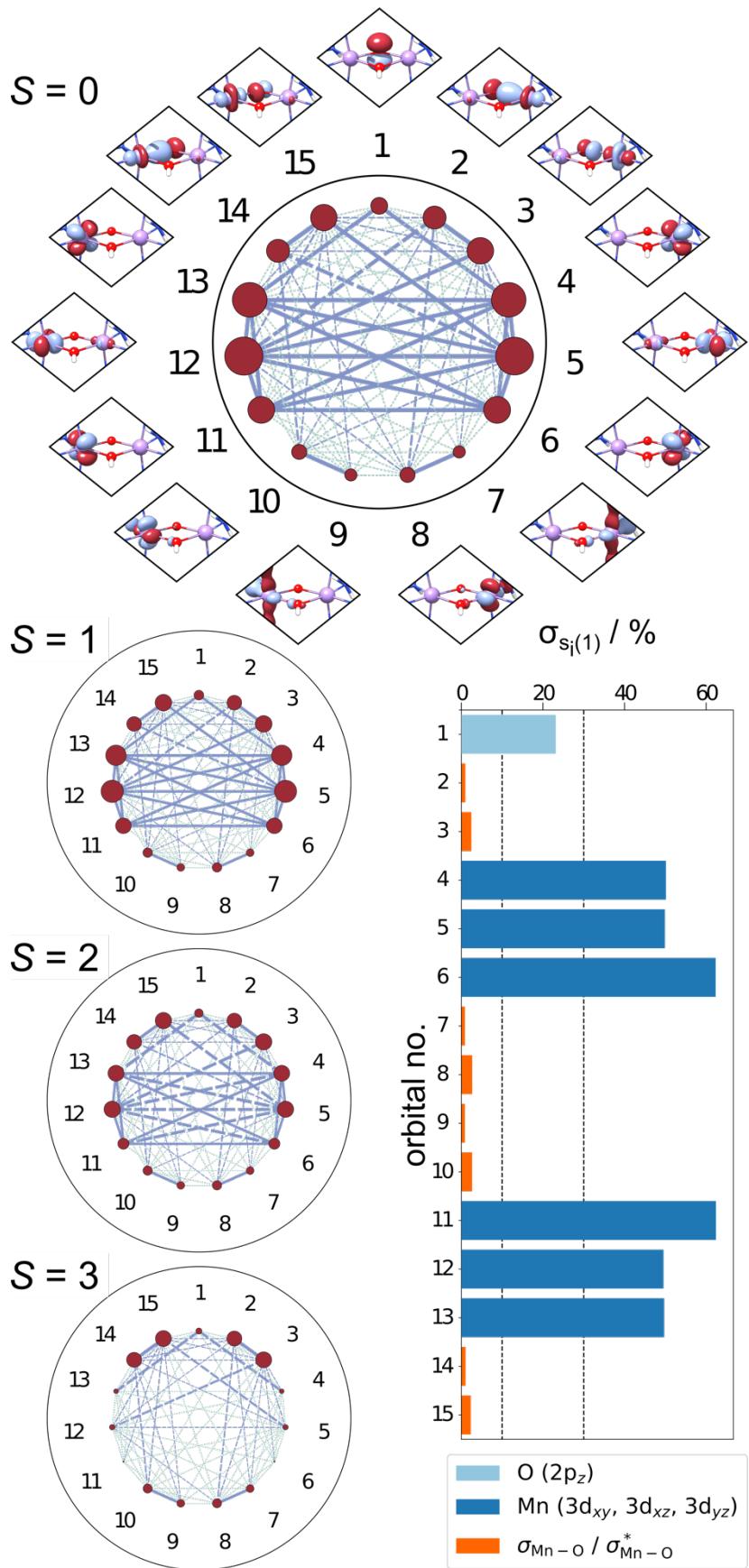


Figure S7. Entanglement diagram of the μ -oxo- μ -hydroxo dimer based on optimized orbitals with a triple- ζ basis set.

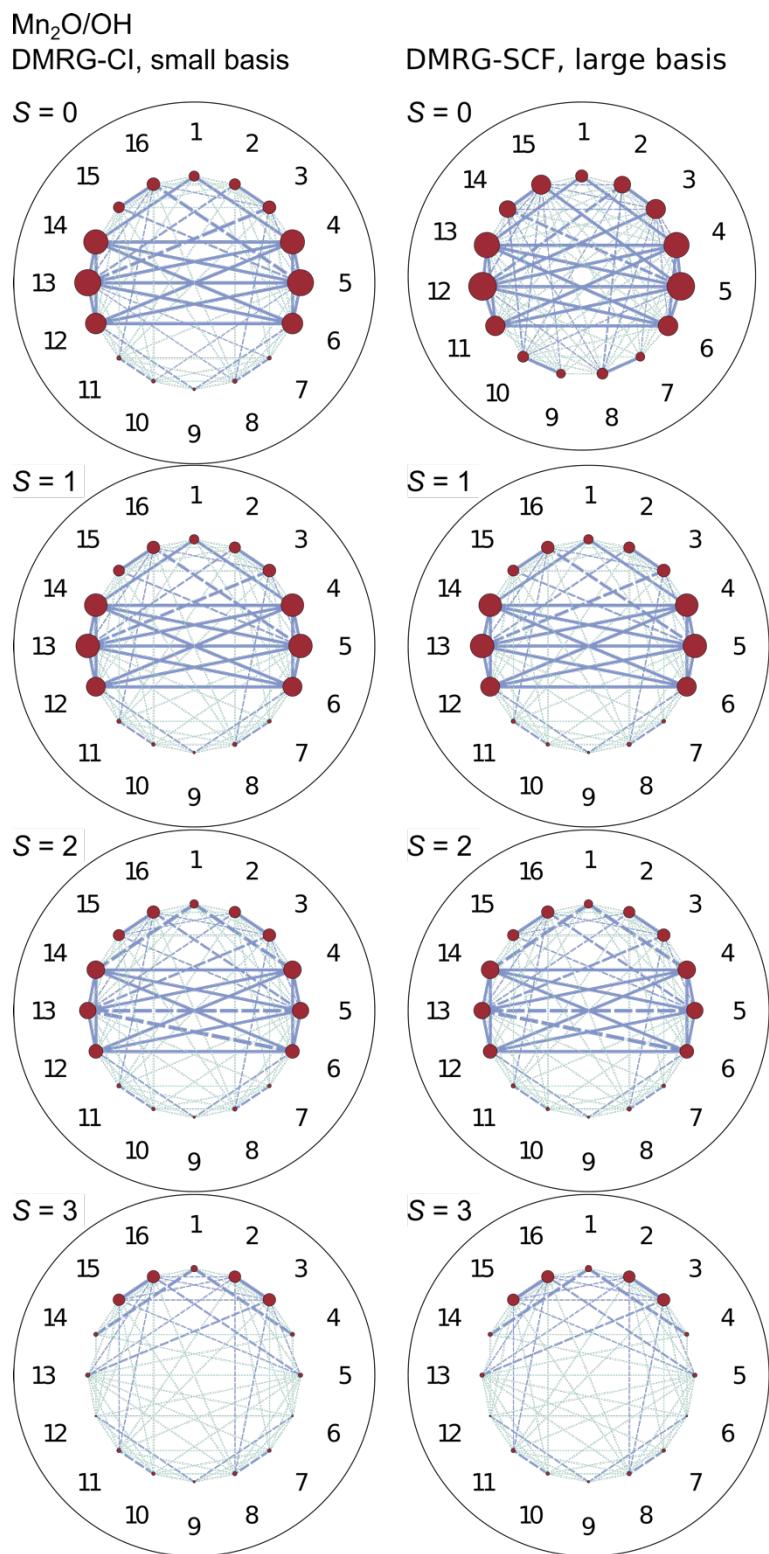


Figure S8. Entanglement diagram for the μ -oxo- μ -hydroxo dimer based on localized (left) orbitals in a minimal basis set and optimized (right) orbitals with a larger triple- ζ basis set.

Table S38: Single-orbital entropies for all four spin-states of the μ -oxo- μ -hydroxo dimer calculated from a DMRG-SCF optimized triple- ζ basis set.

orbital	singlet	triplet	quintet	septet	Relative standard deviation
1	0.44618	0.40212	0.34983	0.25135	23.14
2	0.60778	0.60708	0.61228	0.62006	0.98
3	0.70068	0.69024	0.67800	0.66170	2.46
4	0.91217	0.84293	0.65654	0.18867	50.15
5	0.99744	0.91242	0.67038	0.21900	49.90
6	0.70970	0.64736	0.46022	0.06023	62.35
7	0.32385	0.31836	0.31769	0.31875	0.88
8	0.39867	0.39006	0.38310	0.37449	2.66
9	0.32322	0.31791	0.31696	0.31839	0.88
10	0.39829	0.38975	0.38260	0.37440	2.64
11	0.70765	0.64540	0.45836	0.05969	62.41
12	1.00684	0.92158	0.67725	0.22538	49.54
13	0.91504	0.84581	0.66109	0.19352	49.72
14	0.60818	0.60717	0.61298	0.62093	1.03
15	0.69671	0.68631	0.67507	0.65997	2.32

Table S39: Mutual information matrix for the singlet spin state of the μ -oxo- μ -hydroxo dimer calculated from a DMRG-SCF optimized triple- ζ basis set.

0.00000	0.00447	0.00392	0.12284	0.00080	0.00462	0.00026	0.00033	0.00027	0.00033	0.00388	0.00071	0.12511	0.00461	0.00405
0.00447	0.00000	0.22119	0.00550	0.00159	0.00025	0.00944	0.03109	0.00049	0.01117	0.00122	0.07023	0.00145	0.00813	0.01392
0.00392	0.22119	0.00000	0.01248	0.02758	0.01010	0.01024	0.01843	0.00147	0.00816	0.00136	0.13101	0.00150	0.01383	0.01553
0.12284	0.00550	0.01248	0.00000	0.11639	0.13505	0.00356	0.00181	0.00047	0.00152	0.16476	0.14905	0.19574	0.00146	0.00129
0.00080	0.00159	0.02758	0.11639	0.00000	0.12486	0.00395	0.00773	0.00374	0.01541	0.16563	0.17576	0.14960	0.06825	0.12590
0.00462	0.00025	0.01010	0.13505	0.12486	0.00000	0.00191	0.00008	0.00032	0.00162	0.18547	0.16476	0.16463	0.00125	0.00112
0.00026	0.00944	0.01024	0.00356	0.00395	0.00191	0.00000	0.14618	0.00019	0.00282	0.00030	0.00391	0.00044	0.00047	0.00152
0.00033	0.03109	0.01843	0.00181	0.00773	0.00008	0.14618	0.00000	0.00284	0.00511	0.00152	0.01619	0.00142	0.01105	0.00787
0.00027	0.00049	0.00147	0.00047	0.00374	0.00032	0.00019	0.00284	0.00000	0.14633	0.00196	0.00402	0.00357	0.00934	0.01022
0.00033	0.01117	0.00816	0.00152	0.01541	0.00162	0.00282	0.00511	0.14633	0.00000	0.00009	0.00819	0.00185	0.03130	0.01819
0.00388	0.00122	0.00136	0.16476	0.16563	0.18547	0.00030	0.00152	0.00196	0.00009	0.00000	0.12385	0.13461	0.00021	0.00946
0.00071	0.07023	0.13101	0.14905	0.17576	0.16476	0.00391	0.01619	0.00402	0.00819	0.12385	0.00000	0.11532	0.00168	0.02748
0.12511	0.00145	0.00150	0.19574	0.14960	0.16463	0.00044	0.00142	0.00357	0.00185	0.13461	0.11532	0.00000	0.00566	0.01218
0.00461	0.00813	0.01383	0.00146	0.06825	0.00125	0.00047	0.01105	0.00934	0.03130	0.00021	0.00168	0.00566	0.00000	0.22334
0.00405	0.01392	0.01553	0.00129	0.12590	0.00112	0.00152	0.00787	0.01022	0.01819	0.00946	0.02748	0.01218	0.22334	0.00000

Table S40: Mutual information matrix for the triplet spin state of the μ -oxo- μ -hydroxo dimer calculated from a DMRG-SCF optimized triple- ζ basis set.

0.00000	0.00398	0.00358	0.11034	0.00086	0.00405	0.00021	0.00024	0.00021	0.00024	0.00349	0.00081	0.11260	0.00411	0.00369
0.00398	0.00000	0.23399	0.00528	0.00164	0.00052	0.00986	0.03075	0.00048	0.01063	0.00078	0.05834	0.00105	0.00903	0.01339
0.00358	0.23399	0.00000	0.01120	0.02537	0.00896	0.01034	0.01857	0.00138	0.00743	0.00118	0.11781	0.00129	0.01328	0.01425
0.11034	0.00528	0.01120	0.00000	0.13293	0.14982	0.00332	0.00194	0.00033	0.00108	0.15289	0.13784	0.17821	0.00106	0.00113
0.00086	0.00164	0.02537	0.13293	0.00000	0.14273	0.00388	0.00756	0.00305	0.01428	0.14506	0.14759	0.13841	0.05665	0.11308
0.00405	0.00052	0.00896	0.14982	0.14273	0.00000	0.00182	0.00037	0.00021	0.00108	0.16195	0.14418	0.15269	0.00080	0.00100
0.00021	0.00986	0.01034	0.00332	0.00388	0.00182	0.00000	0.14868	0.00026	0.00273	0.00020	0.00316	0.00030	0.00047	0.00144
0.00024	0.03075	0.01857	0.00194	0.00756	0.00037	0.14868	0.00000	0.00273	0.00476	0.00099	0.01505	0.00099	0.01054	0.00720
0.00021	0.00048	0.00138	0.00033	0.00305	0.00021	0.00026	0.00273	0.00000	0.14902	0.00183	0.00398	0.00341	0.00978	0.01031
0.00024	0.01063	0.00743	0.00108	0.01428	0.00108	0.00273	0.00476	0.14902	0.00000	0.00039	0.00794	0.00197	0.03101	0.01836
0.00349	0.00078	0.00118	0.15289	0.14506	0.16195	0.00020	0.00099	0.00183	0.00039	0.00000	0.14169	0.14958	0.00049	0.00840
0.00081	0.05834	0.11781	0.13784	0.14759	0.14418	0.00316	0.01505	0.00398	0.00794	0.14169	0.00000	0.13182	0.00172	0.02536
0.11260	0.00105	0.00129	0.17821	0.13841	0.15269	0.00030	0.00099	0.00341	0.00197	0.14958	0.13182	0.00000	0.00542	0.01097
0.00411	0.00903	0.01328	0.00106	0.05665	0.00080	0.00047	0.01054	0.00978	0.03101	0.00049	0.00172	0.00542	0.00000	0.23616
0.00369	0.01339	0.01425	0.00113	0.11308	0.00100	0.00144	0.00720	0.01031	0.01836	0.00840	0.02536	0.01097	0.23616	0.00000

Table S41: Mutual information matrix for the quintet spin state of the μ -oxo- μ -hydroxo dimer calculated from a DMRG-SCF optimized triple- ζ basis set.

0.00000	0.00338	0.00321	0.09509	0.00183	0.00469	0.00011	0.00015	0.00011	0.00015	0.00421	0.00181	0.09764	0.00351	0.00334
0.00338	0.00000	0.27456	0.00485	0.00167	0.00098	0.01082	0.03103	0.00055	0.00971	0.00040	0.03542	0.00064	0.01185	0.01222
0.00321	0.27456	0.00000	0.00943	0.02242	0.00744	0.01065	0.01918	0.00132	0.00634	0.00027	0.09050	0.00050	0.01216	0.01304
0.09509	0.00485	0.00943	0.00000	0.10663	0.12328	0.00335	0.00193	0.00021	0.00061	0.10626	0.09199	0.12657	0.00064	0.00044
0.00183	0.00167	0.02242	0.10663	0.00000	0.10342	0.00398	0.00725	0.00188	0.01224	0.08773	0.08694	0.09287	0.03438	0.08680
0.00469	0.00098	0.00744	0.12328	0.10342	0.00000	0.00183	0.00043	0.00006	0.00051	0.10132	0.08688	0.10636	0.00041	0.00022
0.00011	0.01082	0.01065	0.00335	0.00398	0.00183	0.00000	0.16320	0.00045	0.00250	0.00006	0.00196	0.00020	0.00054	0.00137
0.00015	0.03103	0.01918	0.00193	0.00725	0.00043	0.16320	0.00000	0.00248	0.00405	0.00047	0.01292	0.00057	0.00967	0.00618
0.00011	0.00055	0.00132	0.00021	0.00188	0.00006	0.00045	0.00248	0.00000	0.16325	0.00183	0.00405	0.00342	0.01067	0.01053
0.00015	0.00971	0.00634	0.00061	0.01224	0.00051	0.00250	0.00405	0.16325	0.00000	0.00041	0.00757	0.00196	0.03124	0.01900
0.00421	0.00040	0.00027	0.10626	0.08773	0.10132	0.00006	0.00047	0.00183	0.00041	0.00000	0.10242	0.12323	0.00095	0.00712
0.00181	0.03542	0.09050	0.09199	0.08694	0.08688	0.00196	0.01292	0.00405	0.00757	0.10242	0.00000	0.10582	0.00173	0.02242
0.09764	0.00064	0.00050	0.12657	0.09287	0.10636	0.00020	0.00057	0.00342	0.00196	0.12323	0.10582	0.00000	0.00500	0.00935
0.00351	0.01185	0.01216	0.00064	0.03438	0.00041	0.00054	0.00967	0.01067	0.03124	0.00095	0.00173	0.00500	0.00000	0.27648
0.00334	0.01222	0.01304	0.00044	0.08680	0.00022	0.00137	0.00618	0.01053	0.01900	0.00712	0.02242	0.00935	0.27648	0.00000

Table S42: Mutual information matrix for the septet spin state of the μ -oxo- μ -hydroxo dimer calculated from a DMRG-SCF optimized triple- ζ basis set.

0.00000	0.00274	0.00292	0.07304	0.00078	0.00267	0.00005	0.00011	0.00005	0.00011	0.00232	0.00080	0.07636	0.00289	0.00304
0.00274	0.00000	0.35069	0.00701	0.00543	0.00716	0.01225	0.03238	0.00074	0.00893	0.00006	0.01147	0.00013	0.01705	0.01192
0.00292	0.35069	0.00000	0.01030	0.02135	0.01173	0.01108	0.02097	0.00169	0.00546	0.00055	0.05672	0.00036	0.01190	0.01361
0.07304	0.00701	0.01030	0.00000	0.00409	0.00687	0.00702	0.00509	0.00015	0.00019	0.00074	0.00152	0.00655	0.00012	0.00036
0.00078	0.00543	0.02135	0.00409	0.00000	0.00468	0.00678	0.00872	0.00167	0.00981	0.00127	0.01363	0.00146	0.01105	0.05419
0.00267	0.00716	0.01173	0.00687	0.00468	0.00000	0.00335	0.00168	0.00001	0.00004	0.00061	0.00132	0.00081	0.00005	0.00054
0.00005	0.01225	0.01108	0.00702	0.00678	0.00335	0.00000	0.18894	0.00073	0.00218	0.00000	0.00178	0.00016	0.00074	0.00171
0.00011	0.03238	0.02097	0.00509	0.00872	0.00168	0.18894	0.00000	0.00212	0.00315	0.00004	0.01037	0.00019	0.00897	0.00540
0.00005	0.00074	0.00169	0.00015	0.00167	0.00001	0.00073	0.00212	0.00000	0.18895	0.00338	0.00683	0.00704	0.01209	0.01095
0.00011	0.00893	0.00546	0.00019	0.00981	0.00004	0.00218	0.00315	0.18895	0.00000	0.00165	0.00896	0.00509	0.03257	0.02087
0.00232	0.00006	0.00055	0.00074	0.00127	0.00061	0.00000	0.00004	0.00338	0.00165	0.00000	0.00467	0.00665	0.00725	0.01179
0.00080	0.01147	0.05672	0.00152	0.01363	0.00132	0.00178	0.01037	0.00683	0.00896	0.00467	0.00000	0.00404	0.00546	0.02147
0.07636	0.00013	0.00036	0.00655	0.00146	0.00081	0.00016	0.00019	0.00704	0.00509	0.00665	0.00404	0.00000	0.00720	0.01042
0.00289	0.01705	0.01190	0.00012	0.01105	0.00005	0.00074	0.00897	0.01209	0.03257	0.00725	0.00546	0.00720	0.00000	0.35137
0.00304	0.01192	0.01361	0.00036	0.05419	0.00054	0.00171	0.00540	0.01095	0.02087	0.01179	0.02147	0.01042	0.35137	0.00000

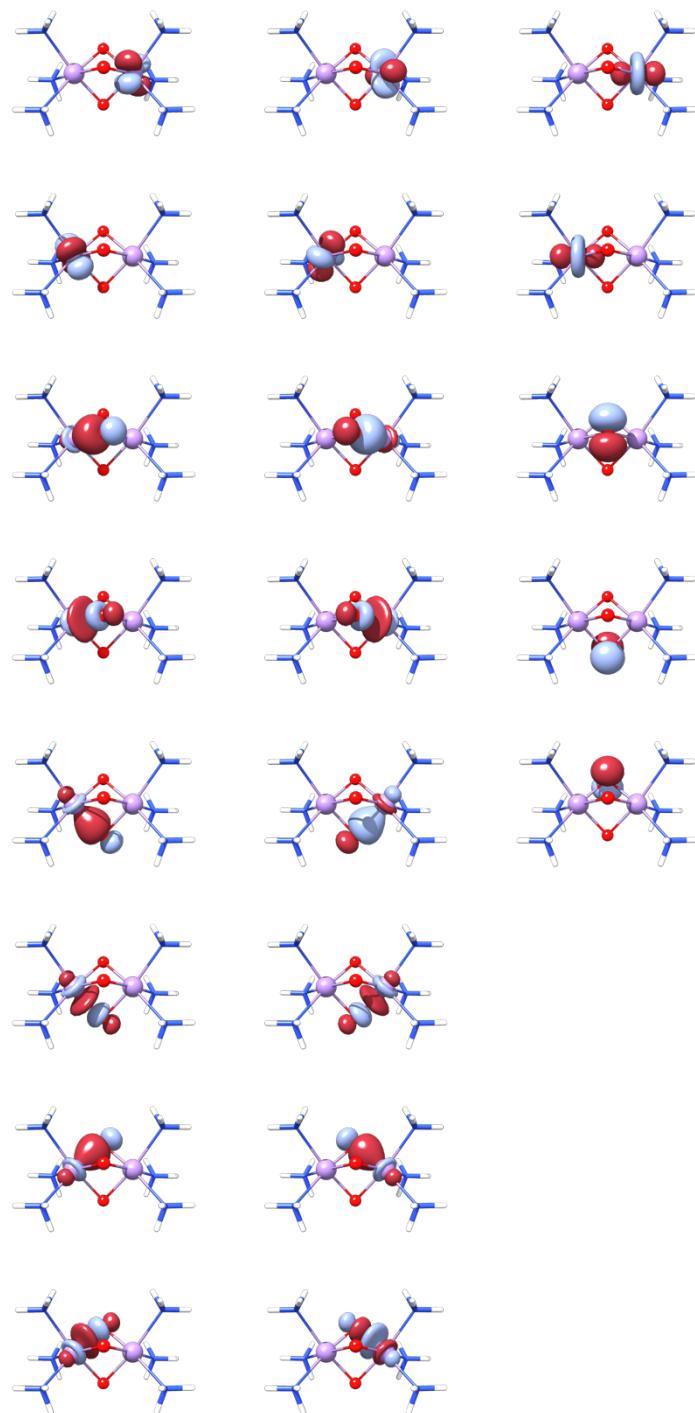


Figure S9. Active space orbitals of the tris- μ -oxo dimer from Pipek-Mezey localization with a small basis set.

Table S43: Single-orbital entropies for all four spin-states of the tris- μ -oxo dimer calculated from a DMRG-CI calculation in a localized minimal basis set.

orbital	singlet	triplet	quintet	septet	Relative standard deviation
1	0.23316	0.21945	0.19197	0.16609	14.70
2	0.23961	0.23286	0.22840	0.22940	2.18
3	0.23285	0.22783	0.22509	0.22935	1.41
4	0.83301	0.76533	0.58609	0.09557	58.42
5	0.88734	0.81344	0.59134	0.15089	54.26
6	0.87557	0.79899	0.57598	0.14667	54.63
7	0.24556	0.23869	0.23475	0.23679	1.96
8	0.23574	0.23070	0.22831	0.23353	1.40
9	0.22312	0.20573	0.18186	0.16669	12.87
10	0.24449	0.23760	0.23373	0.23626	1.93
11	0.23534	0.23020	0.22774	0.23311	1.44
12	0.23863	0.23186	0.22772	0.22891	2.11
13	0.23141	0.22644	0.22404	0.22895	1.40
14	0.22053	0.20565	0.18180	0.16493	12.79
15	0.23972	0.23289	0.22885	0.22995	2.10
16	0.23196	0.22721	0.22499	0.22969	1.32
17	0.87306	0.78657	0.56761	0.14641	54.69
18	0.89329	0.82487	0.59994	0.15736	53.68
19	0.83304	0.76531	0.58612	0.09532	58.45
20	0.23984	0.23301	0.22864	0.22965	2.17
21	0.23271	0.22783	0.22521	0.22947	1.37

Table S44: Mutual information matrix for the singlet spin state of the tris- μ -oxo dimer calculated from a DMRG-CI calculation in a localized minimal basis set.

0.00000	0.00274	0.00348	0.00031	0.04031	0.01214	0.00049	0.00136	0.00373	0.00044	0.00133	0.00043	0.00135	0.00439	0.00045	0.00141	0.00474	0.05511	0.00011	0.00289	0.00363
0.00274	0.00000	0.09146	0.00458	0.00158	0.00104	0.00211	0.00214	0.00043	0.00021	0.00017	0.00201	0.00209	0.00042	0.00022	0.00017	0.00628	0.00131	0.01176	0.00814	0.00508
0.00348	0.09146	0.00000	0.00071	0.00151	0.00085	0.00225	0.00723	0.00146	0.00019	0.00023	0.00208	0.00683	0.00149	0.00019	0.00023	0.00887	0.00163	0.00135	0.00507	0.00416
0.00031	0.00458	0.00071	0.00000	0.12760	0.12938	0.00416	0.00068	0.00015	0.01261	0.00140	0.00453	0.00071	0.00027	0.01187	0.00141	0.16843	0.15797	0.25491	0.01161	0.00133
0.04031	0.00158	0.00151	0.12760	0.00000	0.12728	0.00182	0.00165	0.04396	0.00192	0.00238	0.00096	0.00070	0.00026	0.00735	0.00962	0.19483	0.18984	0.16198	0.00225	0.00279
0.01214	0.00104	0.00085	0.12938	0.12728	0.00000	0.00103	0.00077	0.00910	0.00567	0.00754	0.00200	0.00194	0.05500	0.00027	0.00033	0.18668	0.19703	0.16503	0.00512	0.00696
0.00049	0.00211	0.00225	0.00416	0.00182	0.00103	0.00000	0.09383	0.00273	0.00773	0.00523	0.00210	0.00222	0.00047	0.00021	0.00018	0.00043	0.00764	0.01264	0.00022	0.00019
0.00136	0.00214	0.00723	0.00068	0.00165	0.00077	0.09383	0.00000	0.00348	0.00522	0.00418	0.00210	0.00711	0.00143	0.00017	0.00023	0.00052	0.00931	0.00146	0.00017	0.00023
0.00373	0.00043	0.00146	0.00015	0.04396	0.00910	0.00273	0.00348	0.00000	0.00273	0.00348	0.00043	0.00142	0.00251	0.00044	0.00148	0.05287	0.00156	0.00033	0.00043	0.00153
0.00044	0.00021	0.00019	0.01261	0.00192	0.00567	0.00773	0.00522	0.00273	0.00000	0.09404	0.00021	0.00018	0.00044	0.00210	0.00222	0.00203	0.00097	0.00408	0.00206	0.00220
0.00133	0.00017	0.00023	0.00140	0.00238	0.00754	0.00523	0.00418	0.00348	0.09404	0.00000	0.00017	0.00023	0.00139	0.00212	0.00712	0.00196	0.00074	0.00070	0.00212	0.00708
0.00043	0.00201	0.00208	0.00453	0.00096	0.00200	0.00210	0.00210	0.00043	0.00021	0.00017	0.00000	0.09141	0.00269	0.00826	0.00517	0.00448	0.00300	0.01167	0.00021	0.00017
0.00135	0.00209	0.00683	0.00071	0.00070	0.00194	0.00222	0.00711	0.00142	0.00018	0.00023	0.09141	0.00000	0.00344	0.00520	0.00424	0.00620	0.00373	0.00132	0.00017	0.00023
0.00439	0.00042	0.00149	0.00027	0.00026	0.05500	0.00047	0.00143	0.00251	0.00044	0.00139	0.00269	0.00344	0.00000	0.00268	0.00342	0.01537	0.03477	0.00016	0.00042	0.00147
0.00045	0.00022	0.00019	0.01187	0.00735	0.00027	0.00021	0.00017	0.00044	0.00210	0.00212	0.00826	0.00520	0.00268	0.00000	0.09120	0.00108	0.00155	0.00460	0.00202	0.00213
0.00141	0.00017	0.00023	0.00141	0.00962	0.00033	0.00018	0.00023	0.00148	0.00222	0.00712	0.00517	0.00424	0.00342	0.09120	0.00000	0.00090	0.00140	0.00071	0.00214	0.00692
0.00474	0.00628	0.00887	0.16843	0.19483	0.18668	0.00043	0.00052	0.05287	0.00203	0.00196	0.00448	0.00620	0.01537	0.00108	0.00090	0.00000	0.12617	0.13024	0.00094	0.00075
0.05511	0.00131	0.00163	0.15797	0.18984	0.19703	0.00764	0.00931	0.00156	0.00097	0.00074	0.00300	0.00373	0.03477	0.00155	0.00140	0.12617	0.00000	0.12627	0.00199	0.00194
0.00011	0.01176	0.00135	0.25491	0.16198	0.16503	0.01264	0.00146	0.00033	0.00408	0.00070	0.01167	0.00132	0.00016	0.00460	0.00071	0.13024	0.12627	0.00000	0.00457	0.00070
0.00289	0.00814	0.00507	0.01161	0.00225	0.00512	0.00022	0.00017	0.00043	0.00206	0.00212	0.00021	0.00017	0.00042	0.00202	0.00214	0.00094	0.00199	0.00457	0.00000	0.09157
0.00363	0.00508	0.00416	0.00133	0.00279	0.00696	0.00019	0.00023	0.00153	0.00220	0.00708	0.00017	0.00023	0.00147	0.00213	0.00692	0.00075	0.00194	0.00070	0.09157	0.00000

Table S45: Mutual information matrix for the triplet spin state of the tris- μ -oxo dimer calculated from a DMRG-CI calculation in a localized minimal basis set.

0.00000	0.00271	0.00337	0.00029	0.03764	0.01107	0.00045	0.00131	0.00335	0.00041	0.00130	0.00039	0.00132	0.00417	0.00042	0.00138	0.00407	0.05192	0.00022	0.00286	0.00353
0.00271	0.00000	0.09148	0.00360	0.00154	0.00088	0.00217	0.00224	0.00038	0.00019	0.00017	0.00206	0.00220	0.00038	0.00019	0.00018	0.00530	0.00118	0.01106	0.00815	0.00525
0.00337	0.09148	0.00000	0.00063	0.00150	0.00082	0.00236	0.00725	0.00143	0.00019	0.00022	0.00219	0.00685	0.00143	0.00019	0.00023	0.00779	0.00151	0.00129	0.00524	0.00428
0.00029	0.00360	0.00063	0.00000	0.14674	0.14827	0.00324	0.00060	0.00021	0.01200	0.00135	0.00358	0.00063	0.00026	0.01112	0.00135	0.15909	0.15528	0.22259	0.01088	0.00129
0.03764	0.00154	0.00150	0.14674	0.00000	0.14715	0.00178	0.00164	0.04132	0.00170	0.00215	0.00080	0.00067	0.00033	0.00625	0.00865	0.17200	0.16942	0.15650	0.00198	0.00253
0.01107	0.00088	0.00082	0.14827	0.14715	0.00000	0.00087	0.00073	0.00835	0.00482	0.00671	0.00193	0.00188	0.05109	0.00032	0.00033	0.16540	0.17578	0.15770	0.00435	0.00621
0.00045	0.00217	0.00236	0.00324	0.00178	0.00087	0.00000	0.09377	0.00269	0.00782	0.00545	0.00215	0.00232	0.00042	0.00019	0.00019	0.00043	0.00647	0.01203	0.00019	0.00019
0.00131	0.00224	0.00725	0.00060	0.00164	0.00073	0.09377	0.00000	0.00336	0.00544	0.00435	0.00220	0.00714	0.00136	0.00018	0.00022	0.00046	0.00842	0.00136	0.00017	0.00022
0.00335	0.00038	0.00143	0.00021	0.04132	0.00835	0.00269	0.00336	0.00000	0.00261	0.00328	0.00039	0.00139	0.00212	0.00040	0.00147	0.04659	0.00150	0.00036	0.00039	0.00150
0.00041	0.00019	0.00019	0.01200	0.00170	0.00482	0.00782	0.00544	0.00261	0.00000	0.09385	0.00018	0.00018	0.00040	0.00216	0.00234	0.00187	0.00085	0.00318	0.00213	0.00231
0.00130	0.00017	0.00022	0.00135	0.00215	0.00671	0.00545	0.00435	0.00328	0.09385	0.00000	0.00017	0.00022	0.00134	0.00223	0.00718	0.00182	0.00072	0.00062	0.00223	0.00712
0.00039	0.00206	0.00219	0.00358	0.00080	0.00193	0.00215	0.00220	0.00039	0.00018	0.00017	0.00000	0.09142	0.00263	0.00830	0.00537	0.00380	0.00258	0.01101	0.00018	0.00018
0.00132	0.00220	0.00685	0.00063	0.00067	0.00188	0.00232	0.00714	0.00139	0.00018	0.00022	0.09142	0.00000	0.00329	0.00539	0.00438	0.00544	0.00338	0.00125	0.00017	0.00022
0.00417	0.00038	0.00143	0.00026	0.00033	0.05109	0.00042	0.00136	0.00212	0.00040	0.00134	0.00263	0.00329	0.00000	0.00264	0.00329	0.01317	0.03303	0.00023	0.00039	0.00142
0.00042	0.00019	0.00019	0.01112	0.00625	0.00032	0.00019	0.00018	0.00040	0.00216	0.00223	0.00830	0.00539	0.00264	0.00000	0.09111	0.00090	0.00151	0.00366	0.00208	0.00224
0.00138	0.00018	0.00023	0.00135	0.00865	0.00033	0.00019	0.00022	0.00147	0.00234	0.00718	0.00537	0.00438	0.00329	0.09111	0.00000	0.00081	0.00139	0.00062	0.00225	0.00696
0.00407	0.00530	0.00779	0.15909	0.17200	0.16540	0.00043	0.00046	0.04659	0.00187	0.00182	0.00380	0.00544	0.01317	0.00090	0.00081	0.00000	0.14636	0.14966	0.00074	0.00066
0.05192	0.00118	0.00151	0.15528	0.16942	0.17578	0.00647	0.00842	0.00150	0.00085	0.00072	0.00258	0.00338	0.03303	0.00151	0.00139	0.14636	0.00000	0.14518	0.00200	0.00193
0.00022	0.01106	0.00129	0.22259	0.15650	0.15770	0.01203	0.00136	0.00036	0.00318	0.00062	0.01101	0.00125	0.00023	0.00366	0.00062	0.14966	0.14518	0.00000	0.00364	0.00062
0.00286	0.00815	0.00524	0.01088	0.00198	0.00435	0.00019	0.00017	0.00039	0.00213	0.00223	0.00018	0.00017	0.00039	0.00208	0.00225	0.00074	0.00200	0.00364	0.00000	0.09143
0.00353	0.00525	0.00428	0.00129	0.00253	0.00621	0.00019	0.00022	0.00150	0.00231	0.00712	0.00018	0.00022	0.00142	0.00224	0.00696	0.00066	0.00193	0.00062	0.09143	0.00000

Table S46: Mutual information matrix for the quintet spin state of the tris- μ -oxo dimer calculated from a DMRG-CI calculation in a localized minimal basis set.

0.00000	0.00257	0.00322	0.00058	0.03267	0.00870	0.00035	0.00147	0.00274	0.00033	0.00143	0.00032	0.00145	0.00318	0.00034	0.00151	0.00355	0.04490	0.00059	0.00275	0.00339
0.00257	0.00000	0.09445	0.00273	0.00148	0.00074	0.00230	0.00271	0.00031	0.00018	0.00020	0.00220	0.00267	0.00031	0.00018	0.00020	0.00354	0.00087	0.01081	0.00848	0.00571
0.00322	0.09445	0.00000	0.00058	0.00145	0.00075	0.00287	0.00740	0.00158	0.00021	0.00023	0.00267	0.00700	0.00159	0.00021	0.00024	0.00618	0.00123	0.00121	0.00570	0.00462
0.00058	0.00273	0.00058	0.00000	0.12307	0.12391	0.00240	0.00056	0.00053	0.01189	0.00125	0.00271	0.00058	0.00051	0.01083	0.00127	0.12001	0.11945	0.16098	0.01059	0.00122
0.03267	0.00148	0.00145	0.12307	0.00000	0.11032	0.00169	0.00159	0.03634	0.00118	0.00171	0.00065	0.00067	0.00045	0.00407	0.00679	0.11331	0.11078	0.11912	0.00138	0.00201
0.00870	0.00074	0.00075	0.12391	0.11032	0.00000	0.00073	0.00071	0.00764	0.00318	0.00526	0.00186	0.00179	0.04385	0.00030	0.00031	0.11080	0.11387	0.11993	0.00289	0.00487
0.00035	0.00230	0.00287	0.00240	0.00169	0.00073	0.00000	0.09706	0.00261	0.00819	0.00591	0.00228	0.00282	0.00033	0.00019	0.00021	0.00037	0.00416	0.01204	0.00019	0.00021
0.00147	0.00271	0.00740	0.00056	0.00159	0.00071	0.09706	0.00000	0.00326	0.00589	0.00469	0.00267	0.00729	0.00154	0.00020	0.00023	0.00041	0.00655	0.00125	0.00020	0.00023
0.00274	0.00031	0.00158	0.00053	0.03634	0.00764	0.00261	0.00326	0.00000	0.00247	0.00313	0.00032	0.00154	0.00187	0.00032	0.00161	0.04005	0.00129	0.00052	0.00031	0.00164
0.00033	0.00018	0.00021	0.01189	0.00118	0.00318	0.00819	0.00589	0.00247	0.00000	0.09706	0.00018	0.00020	0.00033	0.00230	0.00284	0.00178	0.00072	0.00238	0.00226	0.00280
0.00143	0.00020	0.00023	0.00125	0.00171	0.00526	0.00591	0.00469	0.00313	0.09706	0.00000	0.00019	0.00023	0.00149	0.00270	0.00735	0.00171	0.00072	0.00058	0.00269	0.00727
0.00032	0.00220	0.00267	0.00271	0.00065	0.00186	0.00228	0.00267	0.00032	0.00018	0.00019	0.00000	0.09451	0.00254	0.00859	0.00581	0.00253	0.00172	0.01076	0.00018	0.00020
0.00145	0.00267	0.00700	0.00058	0.00067	0.00179	0.00282	0.00729	0.00154	0.00020	0.00023	0.09451	0.00000	0.00320	0.00583	0.00470	0.00431	0.00265	0.00118	0.00020	0.00023
0.00318	0.00031	0.00159	0.00051	0.00045	0.04385	0.00033	0.00154	0.00187	0.00033	0.00149	0.00254	0.00320	0.00000	0.00255	0.00319	0.01204	0.02843	0.00051	0.00031	0.00156
0.00034	0.00018	0.00021	0.01083	0.00407	0.00030	0.00019	0.00020	0.00032	0.00230	0.00270	0.00859	0.00583	0.00255	0.00000	0.09441	0.00078	0.00142	0.00276	0.00222	0.00272
0.00151	0.00020	0.00024	0.00127	0.00679	0.00031	0.00021	0.00023	0.00161	0.00284	0.00735	0.00581	0.00470	0.00319	0.09441	0.00000	0.00079	0.00135	0.00057	0.00272	0.00711
0.00355	0.00354	0.00618	0.12001	0.11331	0.11080	0.00037	0.00041	0.04005	0.00178	0.00171	0.00253	0.00431	0.01204	0.00078	0.00079	0.00000	0.10993	0.12378	0.00059	0.00063
0.04490	0.00087	0.00123	0.11945	0.11078	0.11387	0.00416	0.00655	0.00129	0.00072	0.00072	0.00172	0.00265	0.02843	0.00142	0.00135	0.10993	0.00000	0.12315	0.00193	0.00185
0.00059	0.01081	0.00121	0.16098	0.11912	0.11993	0.01204	0.00125	0.00052	0.00238	0.00058	0.01076	0.00118	0.00051	0.00276	0.00057	0.12378	0.12315	0.00000	0.00273	0.00057
0.00275	0.00848	0.00570	0.01059	0.00138	0.00289	0.00019	0.00020	0.00031	0.00226	0.00269	0.00018	0.00020	0.00031	0.00222	0.00272	0.00059	0.00193	0.00273	0.00000	0.09449
0.00339	0.00571	0.00462	0.00122	0.00201	0.00487	0.00021	0.00023	0.00164	0.00280	0.00727	0.00020	0.00023	0.00156	0.00272	0.00711	0.00063	0.00185	0.00057	0.09449	0.00000

Table S47: Mutual information matrix for the septet spin state of the tris- μ -oxo dimer calculated from a DMRG-CI calculation in a localized minimal basis set.

0.00000	0.00262	0.00338	0.00002	0.02728	0.00826	0.00028	0.00218	0.00217	0.00029	0.00213	0.00028	0.00216	0.00239	0.00030	0.00221	0.00372	0.03799	0.00003	0.00279	0.00353
0.00262	0.00000	0.10302	0.00158	0.00191	0.00136	0.00255	0.00363	0.00029	0.00021	0.00028	0.00243	0.00355	0.00029	0.00021	0.00027	0.00147	0.00054	0.01175	0.00911	0.00658
0.00338	0.10302	0.00000	0.00119	0.00200	0.00163	0.00382	0.00763	0.00220	0.00029	0.00030	0.00355	0.00721	0.00222	0.00028	0.00030	0.00421	0.00097	0.00136	0.00658	0.00526
0.00002	0.00158	0.00119	0.00000	0.00097	0.00099	0.00135	0.00124	0.00003	0.01342	0.00135	0.00159	0.00119	0.00003	0.01185	0.00141	0.00003	0.00003	0.00036	0.01161	0.00135
0.02728	0.00191	0.00200	0.00097	0.00000	0.00107	0.00211	0.00216	0.03124	0.00061	0.00125	0.00123	0.00162	0.00008	0.00171	0.00479	0.00484	0.00281	0.00003	0.00071	0.00149
0.00826	0.00136	0.00163	0.00099	0.00107	0.00000	0.00139	0.00165	0.00765	0.00130	0.00363	0.00236	0.00233	0.04055	0.00033	0.00040	0.00284	0.00472	0.00003	0.00123	0.00339
0.00028	0.00255	0.00382	0.00135	0.00211	0.00139	0.00000	0.10600	0.00269	0.00879	0.00667	0.00251	0.00377	0.00029	0.00021	0.00029	0.00035	0.00173	0.01354	0.00021	0.00028
0.00218	0.00363	0.00763	0.00124	0.00216	0.00165	0.10600	0.00000	0.00347	0.00666	0.00524	0.00358	0.00751	0.00222	0.00028	0.00030	0.00048	0.00456	0.00138	0.00028	0.00030
0.00217	0.00029	0.00220	0.00003	0.03124	0.00765	0.00269	0.00347	0.00000	0.00269	0.00346	0.00029	0.00219	0.00208	0.00029	0.00225	0.03988	0.00072	0.00003	0.00029	0.00224
0.00029	0.00021	0.00029	0.01342	0.00061	0.00130	0.00879	0.00666	0.00269	0.00000	0.10597	0.00020	0.00028	0.00029	0.00251	0.00380	0.00238	0.00136	0.00135	0.00249	0.00372
0.00213	0.00028	0.00030	0.00135	0.00125	0.00363	0.00667	0.00524	0.00346	0.10597	0.00000	0.00028	0.00030	0.00215	0.00360	0.00752	0.00237	0.00171	0.00126	0.00357	0.00744
0.00028	0.00243	0.00355	0.00159	0.00123	0.00236	0.00251	0.00358	0.00029	0.00020	0.00028	0.00000	0.10310	0.00269	0.00912	0.00658	0.00111	0.00083	0.01149	0.00020	0.00027
0.00216	0.00355	0.00721	0.00119	0.00162	0.00233	0.00377	0.00751	0.00219	0.00028	0.00030	0.10310	0.00000	0.00345	0.00661	0.00526	0.00295	0.00190	0.00133	0.00027	0.00029
0.00239	0.00029	0.00222	0.00003	0.00008	0.04055	0.00029	0.00222	0.00208	0.00029	0.00215	0.00269	0.00345	0.00000	0.00270	0.00345	0.01276	0.02422	0.00003	0.00028	0.00219
0.00030	0.00021	0.00028	0.01185	0.00171	0.00033	0.00021	0.00028	0.00029	0.00251	0.00360	0.00912	0.00661	0.00270	0.00000	0.10297	0.00142	0.00191	0.00157	0.00243	0.00360
0.00221	0.00027	0.00030	0.00141	0.00479	0.00040	0.00029	0.00030	0.00225	0.00380	0.00752	0.00658	0.00526	0.00345	0.10297	0.00000	0.00167	0.00203	0.00118	0.00361	0.00728
0.00372	0.00147	0.00421	0.00003	0.00484	0.00284	0.00035	0.00048	0.03988	0.00238	0.00237	0.00111	0.00295	0.01276	0.00142	0.00167	0.00000	0.00102	0.00101	0.00123	0.00158
0.03799	0.00054	0.00097	0.00003	0.00281	0.00472	0.00173	0.00456	0.00072	0.00136	0.00171	0.00083	0.00190	0.02422	0.00191	0.00203	0.00102	0.00000	0.00095	0.00233	0.00235
0.00003	0.01175	0.00136	0.00036	0.00003	0.01354	0.00138	0.00003	0.00135	0.00126	0.01149	0.00133	0.00003	0.00157	0.00118	0.00101	0.00095	0.00000	0.00158	0.00119	0.00119
0.00279	0.00911	0.00658	0.01161	0.00071	0.00123	0.00021	0.00028	0.00029	0.00249	0.00357	0.00020	0.00027	0.00028	0.00243	0.00361	0.00123	0.00233	0.00158	0.00000	0.10313
0.00353	0.00658	0.00526	0.00135	0.00149	0.00339	0.00028	0.00030	0.00224	0.00372	0.00744	0.00027	0.00029	0.00219	0.00360	0.00728	0.00158	0.00235	0.00119	0.10313	0.00000

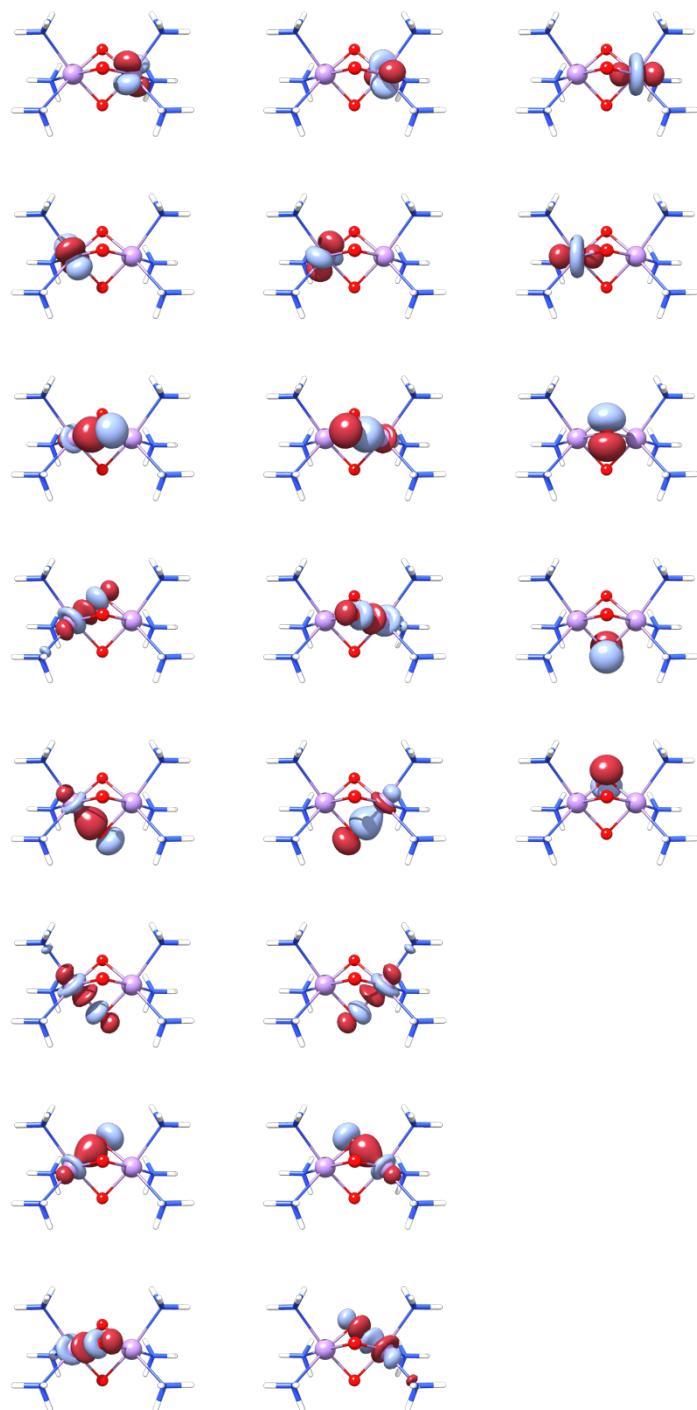


Figure S10. Active space orbitals of the tris- μ -oxo dimer from orbital optimization for the singlet state with a large basis set.

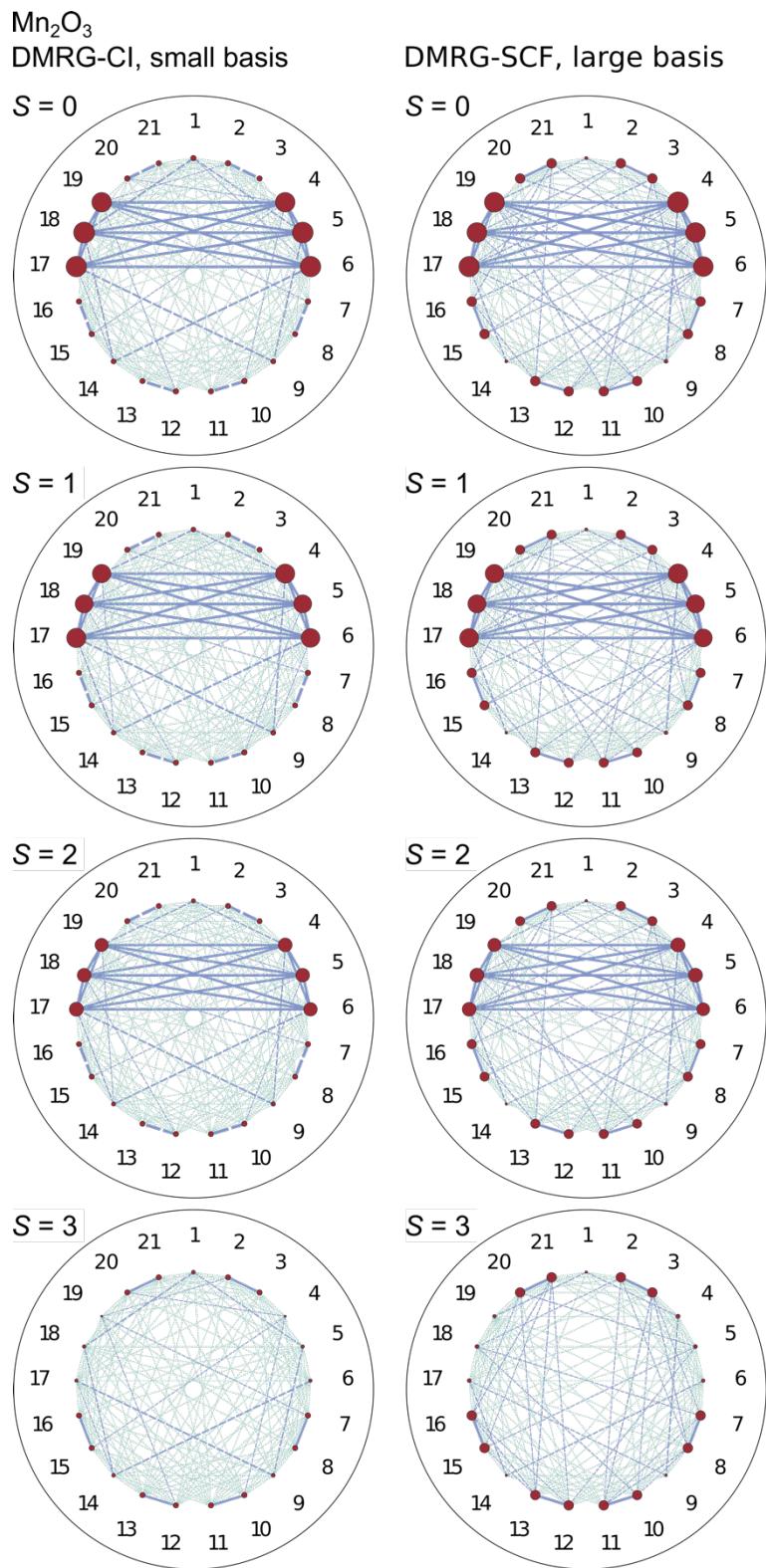


Figure S11. Entanglement diagram of the tris- μ -oxo dimer based on localized (left) orbitals in a minimal basis set and optimized (right) orbitals with a larger triple- ζ basis set.

Table S48: Single-orbital entropies for all four spin-states of the tris- μ -oxo dimer calculated from a DMRG-SCF optimized triple- ζ basis set.

orbital	singlet	triplet	quintet	septet	Relative standard deviation
1	0.14001	0.13772	0.11651	0.11054	11.78
2	0.41083	0.39591	0.39315	0.41282	2.50
3	0.41356	0.40109	0.39845	0.41456	2.05
4	0.88271	0.82190	0.60616	0.18055	51.03
5	0.84567	0.76871	0.59707	0.16731	51.00
6	0.84190	0.76436	0.55071	0.15156	53.59
7	0.41141	0.39676	0.39367	0.41291	2.45
8	0.41471	0.40226	0.39927	0.41464	1.99
9	0.16697	0.16077	0.13881	0.11762	15.39
10	0.40891	0.39426	0.39118	0.41105	2.51
11	0.41167	0.39933	0.39653	0.41340	2.11
12	0.41037	0.39561	0.39176	0.41143	2.50
13	0.41493	0.40268	0.39803	0.41402	2.05
14	0.13546	0.12779	0.11127	0.10965	10.44
15	0.41306	0.39684	0.39298	0.41326	2.64
16	0.41425	0.40171	0.39736	0.41439	2.14
17	0.86865	0.80425	0.59078	0.16608	52.24
18	0.84486	0.77074	0.59662	0.16798	50.94
19	0.84694	0.78277	0.56347	0.15276	53.47
20	0.40952	0.39467	0.39134	0.41151	2.55
21	0.41280	0.40091	0.39668	0.41373	2.10

Table S49: Mutual information matrix for the singlet spin state of the tris- μ -oxo dimer calculated from a DMRG-SCF optimized triple- ζ basis set.

0.00000	0.00120	0.00120	0.02465	0.00013	0.00664	0.00077	0.00005	0.00296	0.00081	0.00005	0.00076	0.00005	0.00084	0.00088	0.00004	0.00041	0.00039	0.03000	0.00111	0.00114
0.00120	0.00000	0.13927	0.00082	0.00162	0.00047	0.00567	0.00585	0.00083	0.00559	0.00577	0.00030	0.00015	0.00083	0.00029	0.00013	0.01454	0.01668	0.00027	0.00601	0.00483
0.00120	0.13927	0.00000	0.00208	0.00199	0.00180	0.00597	0.01682	0.00007	0.00587	0.01656	0.00013	0.00013	0.00004	0.00014	0.00012	0.02536	0.00165	0.00017	0.00483	0.00365
0.02465	0.00082	0.00208	0.00000	0.12651	0.12836	0.00106	0.00220	0.04133	0.00070	0.00215	0.00216	0.00344	0.00143	0.01461	0.02412	0.18194	0.15296	0.17575	0.00534	0.00909
0.00013	0.00162	0.00199	0.12651	0.00000	0.13149	0.00159	0.00199	0.00012	0.00159	0.00202	0.01683	0.00157	0.00042	0.01691	0.00165	0.15818	0.21330	0.16430	0.01685	0.00152
0.00664	0.00047	0.00180	0.12836	0.13149	0.00000	0.00047	0.00199	0.00181	0.00067	0.00181	0.01251	0.02405	0.02627	0.00056	0.00073	0.17360	0.16841	0.17700	0.00870	0.01662
0.00077	0.00567	0.00597	0.00106	0.00159	0.00047	0.00000	0.14013	0.00149	0.00549	0.00581	0.00582	0.00467	0.00077	0.00029	0.00013	0.00405	0.01636	0.01004	0.00029	0.00013
0.00005	0.00585	0.01682	0.00220	0.00199	0.00199	0.14013	0.00000	0.00145	0.00575	0.01637	0.00470	0.00353	0.00004	0.00013	0.00012	0.00683	0.00156	0.01855	0.00013	0.00013
0.00296	0.00083	0.00007	0.04133	0.00012	0.00181	0.00149	0.00145	0.00000	0.00080	0.00007	0.00132	0.00131	0.00222	0.00090	0.00006	0.02689	0.00048	0.00617	0.00080	0.00006
0.00081	0.00559	0.00587	0.00070	0.00159	0.00067	0.00549	0.00575	0.00080	0.00000	0.13969	0.00029	0.00014	0.00106	0.00608	0.00488	0.00322	0.01687	0.01088	0.00029	0.00013
0.00005	0.00577	0.01656	0.00215	0.00202	0.00181	0.00581	0.01637	0.00007	0.13969	0.00000	0.00013	0.00013	0.00110	0.00488	0.00370	0.00547	0.00160	0.01978	0.00013	0.00013
0.00076	0.00030	0.00013	0.00216	0.01683	0.01251	0.00582	0.00470	0.00132	0.00029	0.00013	0.00000	0.13966	0.00078	0.00570	0.00596	0.00079	0.00159	0.00051	0.00552	0.00575
0.00005	0.00015	0.00013	0.00344	0.00157	0.02405	0.00467	0.00353	0.00131	0.00014	0.00013	0.13966	0.00000	0.00005	0.00577	0.01694	0.00207	0.00206	0.00205	0.00565	0.01646
0.00084	0.00083	0.00004	0.00143	0.00042	0.02627	0.00077	0.00004	0.00222	0.00106	0.00110	0.00078	0.00005	0.00000	0.00116	0.00119	0.02800	0.00013	0.00410	0.00082	0.00005
0.00088	0.00029	0.00014	0.01461	0.01691	0.00056	0.00029	0.00013	0.00090	0.00608	0.00488	0.00570	0.00577	0.00116	0.00000	0.13973	0.00084	0.00166	0.00058	0.00566	0.00568
0.00004	0.00013	0.00012	0.02412	0.00165	0.00073	0.00013	0.00012	0.00006	0.00488	0.00370	0.00596	0.01694	0.00119	0.13973	0.00000	0.00195	0.00197	0.00191	0.00578	0.01666
0.00041	0.01454	0.02536	0.18194	0.15818	0.17360	0.00405	0.00683	0.02689	0.00322	0.00547	0.00079	0.00207	0.02800	0.00084	0.00195	0.00000	0.12812	0.13019	0.00068	0.00214
0.00039	0.01668	0.00165	0.15296	0.21330	0.16841	0.01636	0.00156	0.00048	0.01687	0.00160	0.00159	0.00206	0.00013	0.00166	0.00197	0.12812	0.00000	0.13071	0.00161	0.00202
0.03000	0.00027	0.00017	0.17575	0.16430	0.17700	0.01004	0.01855	0.00617	0.01088	0.01978	0.00051	0.00205	0.00410	0.00058	0.00191	0.13019	0.13071	0.00000	0.00076	0.00186
0.00111	0.00601	0.00483	0.00534	0.01685	0.00870	0.00029	0.00013	0.00080	0.00029	0.00013	0.00552	0.00565	0.00082	0.00566	0.00578	0.00068	0.00161	0.00076	0.00000	0.13972
0.00114	0.00483	0.00365	0.00909	0.00152	0.01662	0.00013	0.00006	0.00013	0.00013	0.00575	0.01646	0.00005	0.00568	0.01666	0.00214	0.00202	0.00186	0.13972	0.00000	

Table S50: Mutual information matrix for the triplet spin state of the tris- μ -oxo dimer calculated from a DMRG-SCF optimized triple- ζ basis set.

0.00000	0.00127	0.00125	0.02424	0.00023	0.00621	0.00070	0.00008	0.00292	0.00073	0.00007	0.00069	0.00008	0.00080	0.00079	0.00007	0.00031	0.00028	0.03090	0.00122	0.00121
0.00127	0.00000	0.13951	0.00093	0.00115	0.00041	0.00589	0.00630	0.00076	0.00583	0.00621	0.00025	0.00016	0.00075	0.00024	0.00014	0.01190	0.01459	0.00020	0.00620	0.00497
0.00125	0.13951	0.00000	0.00213	0.00173	0.00164	0.00642	0.01651	0.00010	0.00630	0.01632	0.00014	0.00013	0.00006	0.00014	0.00012	0.02216	0.00165	0.00023	0.00490	0.00378
0.02424	0.00093	0.00213	0.00000	0.14418	0.14610	0.00119	0.00226	0.03955	0.00074	0.00216	0.00181	0.00311	0.00128	0.01199	0.02117	0.16112	0.14972	0.16191	0.00441	0.00803
0.00023	0.00115	0.00173	0.14418	0.00000	0.15012	0.00112	0.00173	0.00024	0.00113	0.00175	0.01415	0.00150	0.00042	0.01426	0.00153	0.15230	0.18822	0.15422	0.01411	0.00143
0.00621	0.00041	0.00164	0.14610	0.15012	0.00000	0.00040	0.00179	0.00176	0.00067	0.00169	0.01012	0.02038	0.02356	0.00045	0.00071	0.15830	0.15590	0.15785	0.00698	0.01407
0.00070	0.00589	0.00642	0.00119	0.00112	0.00040	0.00000	0.14044	0.00156	0.00572	0.00626	0.00600	0.00481	0.00070	0.00024	0.00014	0.00334	0.01425	0.00816	0.00024	0.00014
0.00008	0.00630	0.01651	0.00226	0.00173	0.00179	0.14044	0.00000	0.00148	0.00621	0.01613	0.00478	0.00366	0.00006	0.00014	0.00012	0.00602	0.00157	0.01602	0.00014	0.00012
0.00292	0.00076	0.00010	0.03955	0.00024	0.00176	0.00156	0.00148	0.00000	0.00074	0.00009	0.00139	0.00134	0.00209	0.00081	0.00008	0.02604	0.00035	0.00598	0.00072	0.00008
0.00073	0.00583	0.00630	0.00074	0.00113	0.00067	0.00572	0.00621	0.00074	0.00000	0.13978	0.00024	0.00015	0.00107	0.00629	0.00503	0.00265	0.01471	0.00884	0.00024	0.00014
0.00007	0.00621	0.01632	0.00216	0.00175	0.00169	0.00626	0.01613	0.00009	0.13978	0.00000	0.00014	0.00013	0.00108	0.00499	0.00384	0.00484	0.00161	0.01710	0.00014	0.00012
0.00069	0.00025	0.00014	0.00181	0.01415	0.01012	0.00600	0.00478	0.00139	0.00024	0.00014	0.00000	0.14063	0.00068	0.00594	0.00647	0.00084	0.00110	0.00047	0.00576	0.00630
0.00008	0.00016	0.00013	0.00311	0.00150	0.02038	0.00481	0.00366	0.00134	0.00015	0.00013	0.14063	0.00000	0.00007	0.00627	0.01658	0.00215	0.00183	0.00200	0.00624	0.01610
0.00080	0.00075	0.00006	0.00128	0.00042	0.02356	0.00070	0.00006	0.00209	0.00107	0.00108	0.00068	0.00007	0.00000	0.00124	0.00123	0.02779	0.00025	0.00423	0.00071	0.00007
0.00079	0.00024	0.00014	0.01199	0.01426	0.00045	0.00024	0.00014	0.00081	0.00629	0.00499	0.00594	0.00627	0.00124	0.00000	0.13994	0.00089	0.00114	0.00051	0.00590	0.00613
0.00007	0.00014	0.00012	0.02117	0.00153	0.00071	0.00014	0.00012	0.00008	0.00503	0.00384	0.00647	0.01658	0.00123	0.13994	0.00000	0.00207	0.00176	0.00188	0.00627	0.01635
0.00031	0.01190	0.02216	0.16112	0.15230	0.15830	0.00334	0.00602	0.02604	0.00265	0.00484	0.00084	0.00215	0.02779	0.00089	0.00207	0.00000	0.14606	0.14731	0.00062	0.00216
0.00028	0.01459	0.00165	0.14972	0.18822	0.15590	0.01425	0.00157	0.00035	0.01471	0.00161	0.00110	0.00183	0.00025	0.00114	0.00176	0.14606	0.00000	0.14806	0.00111	0.00180
0.03090	0.00020	0.00023	0.16191	0.15422	0.15785	0.00816	0.01602	0.00598	0.00884	0.01710	0.00047	0.00200	0.00423	0.00051	0.00188	0.14731	0.14806	0.00000	0.00085	0.00196
0.00122	0.00620	0.00490	0.00441	0.01411	0.00698	0.00024	0.00014	0.00072	0.00024	0.00014	0.00576	0.00624	0.00071	0.00590	0.00627	0.00062	0.00111	0.00085	0.00000	0.14061
0.00121	0.00497	0.00378	0.00803	0.00143	0.01407	0.00014	0.00012	0.00008	0.00014	0.00012	0.00630	0.01610	0.00007	0.00613	0.01635	0.00216	0.00180	0.00196	0.14061	0.00000

Table S51: Mutual information matrix for the quintet spin state of the tris- μ -oxo dimer calculated from a DMRG-SCF optimized triple- ζ basis set.

0.00000	0.00120	0.00120	0.02136	0.00041	0.00564	0.00057	0.00015	0.00226	0.00059	0.00014	0.00056	0.00014	0.00070	0.00063	0.00014	0.00035	0.00039	0.02478	0.00107	0.00110
0.00120	0.00000	0.14848	0.00110	0.00111	0.00054	0.00643	0.00815	0.00063	0.00634	0.00803	0.00024	0.00018	0.00061	0.00024	0.00017	0.00691	0.01306	0.00015	0.00709	0.00560
0.00120	0.14848	0.00000	0.00219	0.00168	0.00162	0.00824	0.01670	0.00017	0.00812	0.01646	0.00017	0.00014	0.00014	0.00017	0.00014	0.01637	0.00161	0.00014	0.00558	0.00436
0.02136	0.00110	0.00219	0.00000	0.11824	0.10983	0.00133	0.00232	0.03483	0.00093	0.00228	0.00107	0.00227	0.00092	0.00692	0.01549	0.10051	0.10835	0.10124	0.00255	0.00583
0.00041	0.00111	0.00168	0.11824	0.00000	0.11935	0.00109	0.00168	0.00052	0.00110	0.00169	0.01307	0.00143	0.00042	0.01318	0.00144	0.10871	0.13462	0.10942	0.01311	0.00138
0.00564	0.00054	0.00162	0.10983	0.11935	0.00000	0.00054	0.00175	0.00161	0.00078	0.00161	0.00579	0.01539	0.01991	0.00027	0.00050	0.10112	0.10956	0.10075	0.00403	0.01060
0.00057	0.00643	0.00824	0.00133	0.00109	0.00054	0.00000	0.14936	0.00148	0.00624	0.00803	0.00685	0.00542	0.00058	0.00023	0.00017	0.00198	0.01274	0.00472	0.00023	0.00017
0.00015	0.00815	0.01670	0.00232	0.00168	0.00175	0.14936	0.00000	0.00142	0.00797	0.01625	0.00543	0.00422	0.00014	0.00017	0.00014	0.00443	0.00154	0.01196	0.00017	0.00014
0.00226	0.00063	0.00017	0.03483	0.00052	0.00161	0.00148	0.00142	0.00000	0.00059	0.00016	0.00127	0.00126	0.00176	0.00065	0.00016	0.02254	0.00050	0.00441	0.00059	0.00015
0.00059	0.00634	0.00812	0.00093	0.00110	0.00078	0.00624	0.00797	0.00059	0.00000	0.14851	0.00024	0.00018	0.00100	0.00716	0.00564	0.00157	0.01311	0.00515	0.00024	0.00017
0.00014	0.00803	0.01646	0.00228	0.00169	0.00161	0.00803	0.01625	0.00016	0.14851	0.00000	0.00017	0.00014	0.00105	0.00565	0.00442	0.00354	0.00160	0.01276	0.00017	0.00014
0.00056	0.00024	0.00017	0.00107	0.01307	0.00579	0.00685	0.00543	0.00127	0.00024	0.00017	0.00000	0.14890	0.00055	0.00641	0.00816	0.00098	0.00110	0.00060	0.00625	0.00795
0.00014	0.00018	0.00014	0.00227	0.00143	0.01539	0.00542	0.00422	0.00126	0.00018	0.00014	0.14890	0.00000	0.00013	0.00802	0.01669	0.00206	0.00171	0.00189	0.00790	0.01627
0.00070	0.00061	0.00014	0.00092	0.00042	0.01991	0.00058	0.00014	0.00176	0.00100	0.00105	0.00055	0.00013	0.00000	0.00119	0.00120	0.02516	0.00045	0.00395	0.00058	0.00013
0.00063	0.00024	0.00017	0.00692	0.01318	0.00027	0.00023	0.00017	0.00065	0.00716	0.00565	0.00641	0.00802	0.00119	0.00000	0.14864	0.00106	0.00114	0.00065	0.00635	0.00784
0.00014	0.00017	0.00014	0.01549	0.00144	0.00050	0.00017	0.00014	0.00016	0.00564	0.00442	0.00816	0.01669	0.00120	0.14864	0.00000	0.00202	0.00168	0.00182	0.00794	0.01651
0.00035	0.00691	0.01637	0.10051	0.10871	0.10112	0.00198	0.00443	0.02254	0.00157	0.00354	0.00098	0.00206	0.02516	0.00106	0.00202	0.00000	0.11833	0.11119	0.00083	0.00213
0.00039	0.01306	0.00161	0.10835	0.13462	0.10956	0.01274	0.00154	0.00050	0.01311	0.00160	0.00110	0.00171	0.00045	0.00114	0.00168	0.11833	0.00000	0.11904	0.00113	0.00170
0.02478	0.00015	0.00014	0.10124	0.10942	0.10075	0.00472	0.01196	0.00441	0.00515	0.01276	0.00060	0.00189	0.00395	0.00065	0.00182	0.11119	0.11904	0.00000	0.00091	0.00179
0.00107	0.00709	0.00558	0.00255	0.01311	0.00403	0.00023	0.00017	0.00059	0.00024	0.00017	0.00625	0.00790	0.00058	0.00635	0.00794	0.00083	0.00113	0.00091	0.00000	0.14913
0.00110	0.00560	0.00436	0.00583	0.00138	0.01060	0.00017	0.00014	0.00015	0.00017	0.00014	0.00795	0.01627	0.00013	0.00784	0.01651	0.00213	0.00170	0.00179	0.14913	0.00000

Table S52: Mutual information matrix for the septet spin state of the tris- μ -oxo dimer calculated from a DMRG-SCF optimized triple- ζ basis set.

0.00000	0.00118	0.00127	0.01887	0.00006	0.00744	0.00049	0.00032	0.00173	0.00048	0.00030	0.00049	0.00031	0.00110	0.00051	0.00032	0.00009	0.00005	0.02517	0.00109	0.00121
0.00118	0.00000	0.17058	0.00255	0.00281	0.00232	0.00694	0.01175	0.00050	0.00692	0.01173	0.00033	0.00028	0.00050	0.00033	0.00027	0.00171	0.01456	0.00015	0.00912	0.00706
0.00127	0.17058	0.00000	0.00353	0.00331	0.00342	0.01182	0.01723	0.00033	0.01177	0.01705	0.00027	0.00021	0.00032	0.00028	0.00021	0.00961	0.00198	0.00020	0.00703	0.00545
0.01887	0.00255	0.00353	0.00000	0.00367	0.00419	0.00250	0.00335	0.03059	0.00303	0.00411	0.00038	0.00144	0.00044	0.00174	0.00901	0.00199	0.00003	0.00284	0.00069	0.00345
0.00006	0.00281	0.00331	0.00367	0.00000	0.00383	0.00283	0.00332	0.00007	0.00274	0.00328	0.01442	0.00191	0.00006	0.01448	0.00192	0.00004	0.00138	0.00004	0.01418	0.00186
0.00744	0.00232	0.00342	0.00419	0.00383	0.00000	0.00263	0.00379	0.00167	0.00197	0.00284	0.00134	0.00905	0.02435	0.00017	0.00040	0.00275	0.00005	0.00178	0.00094	0.00625
0.00049	0.00694	0.01182	0.00250	0.00283	0.00263	0.00000	0.17112	0.00133	0.00680	0.01159	0.00901	0.00696	0.00050	0.00032	0.00027	0.00054	0.01429	0.00112	0.00032	0.00027
0.00032	0.01175	0.01723	0.00335	0.00332	0.00379	0.17112	0.00000	0.00138	0.01153	0.01682	0.00697	0.00539	0.00031	0.00027	0.00020	0.00268	0.00191	0.00703	0.00026	0.00020
0.00173	0.00050	0.00033	0.03059	0.00007	0.00167	0.00133	0.00138	0.00000	0.00049	0.00031	0.00114	0.00125	0.00138	0.00052	0.00034	0.01837	0.00004	0.00410	0.00049	0.00031
0.00048	0.00692	0.01177	0.00303	0.00274	0.00197	0.00680	0.01153	0.00049	0.00000	0.17085	0.00032	0.00028	0.00107	0.00914	0.00705	0.00046	0.01424	0.00120	0.00032	0.00027
0.00030	0.01173	0.01705	0.00411	0.00328	0.00284	0.01159	0.01682	0.00031	0.17085	0.00000	0.00027	0.00021	0.00120	0.00707	0.00547	0.00216	0.00201	0.00749	0.00027	0.00021
0.00049	0.00033	0.00027	0.00038	0.01442	0.00134	0.00901	0.00697	0.00114	0.00032	0.00027	0.00000	0.17085	0.00048	0.00698	0.01175	0.00223	0.00280	0.00242	0.00684	0.01151
0.00031	0.00028	0.00021	0.00144	0.00191	0.00905	0.00696	0.00539	0.00125	0.00028	0.00021	0.17085	0.00000	0.00030	0.01176	0.01727	0.00320	0.00333	0.00358	0.01153	0.01683
0.00110	0.00050	0.00032	0.00044	0.00006	0.02435	0.00050	0.00031	0.00138	0.00107	0.00120	0.00048	0.00030	0.00000	0.00117	0.00128	0.02257	0.00007	0.00475	0.00048	0.00030
0.00051	0.00033	0.00028	0.00174	0.01448	0.00017	0.00032	0.00027	0.00052	0.00914	0.00707	0.00698	0.01176	0.00117	0.00000	0.17134	0.00237	0.00284	0.00262	0.00691	0.01160
0.00032	0.00027	0.00021	0.00901	0.00192	0.00040	0.00027	0.00020	0.00034	0.00705	0.00547	0.01175	0.01727	0.00128	0.17134	0.00000	0.00327	0.00332	0.00367	0.01160	0.01709
0.00009	0.00171	0.00961	0.00199	0.00004	0.00275	0.00054	0.00268	0.01837	0.00046	0.00216	0.00223	0.00320	0.02257	0.00237	0.00327	0.00000	0.00371	0.00436	0.00293	0.00405
0.00005	0.01456	0.00198	0.00003	0.00138	0.00005	0.01429	0.00191	0.00004	0.01424	0.00201	0.00280	0.00333	0.00007	0.00284	0.00332	0.00371	0.00000	0.00377	0.00283	0.00333
0.02517	0.00015	0.00020	0.00284	0.00004	0.00178	0.00112	0.00703	0.00410	0.00120	0.00749	0.00242	0.00358	0.00475	0.00262	0.00367	0.00436	0.00377	0.00000	0.00204	0.00289
0.00109	0.00912	0.00703	0.00069	0.01418	0.00094	0.00032	0.00026	0.00049	0.00032	0.00027	0.00684	0.01153	0.00048	0.00691	0.01160	0.00293	0.00283	0.00204	0.00000	0.17163
0.00121	0.00706	0.00545	0.00345	0.00186	0.00625	0.00027	0.00020	0.00031	0.00027	0.00021	0.01151	0.01683	0.00030	0.01160	0.01709	0.00405	0.00333	0.00289	0.17163	0.00000

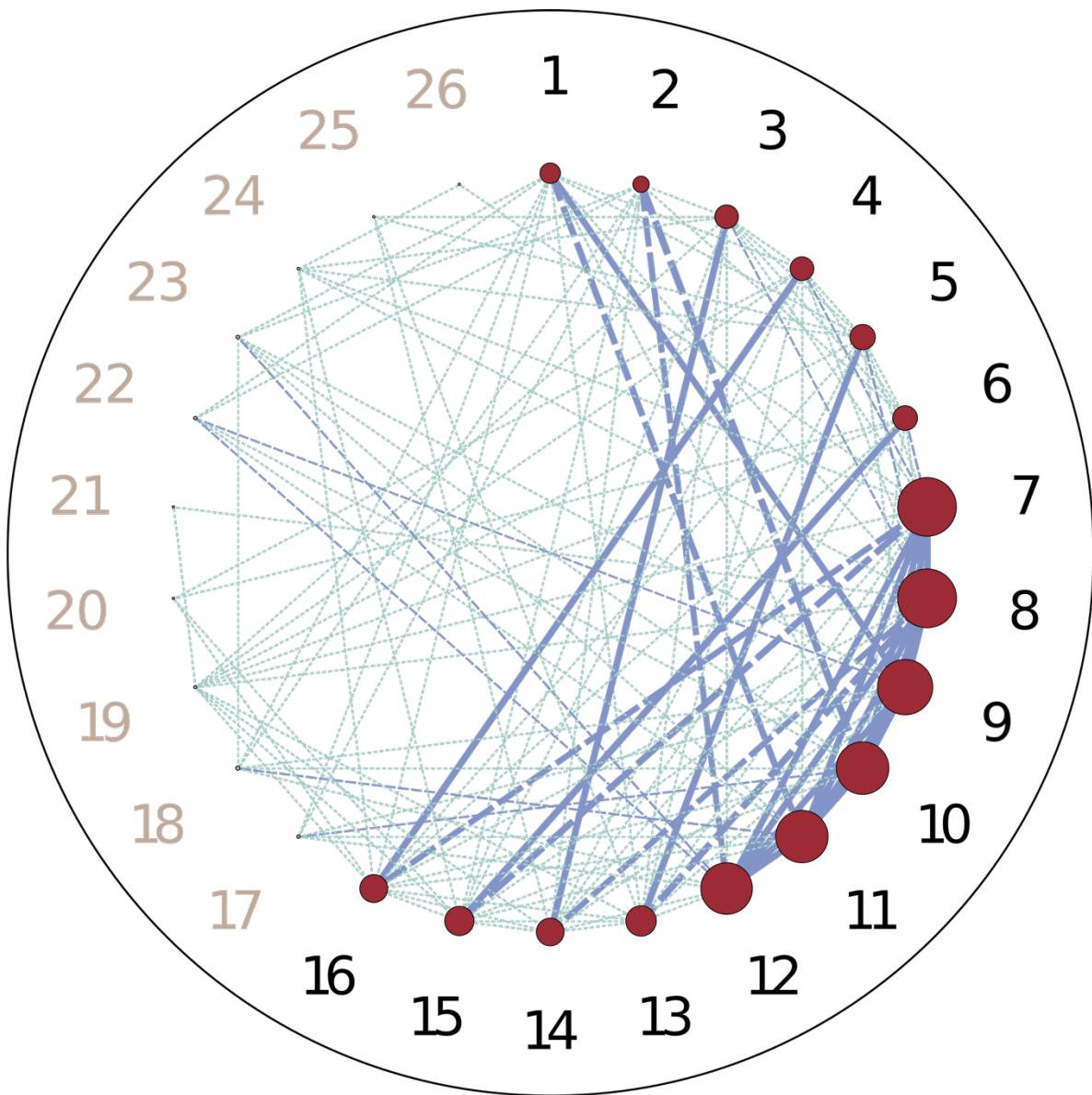
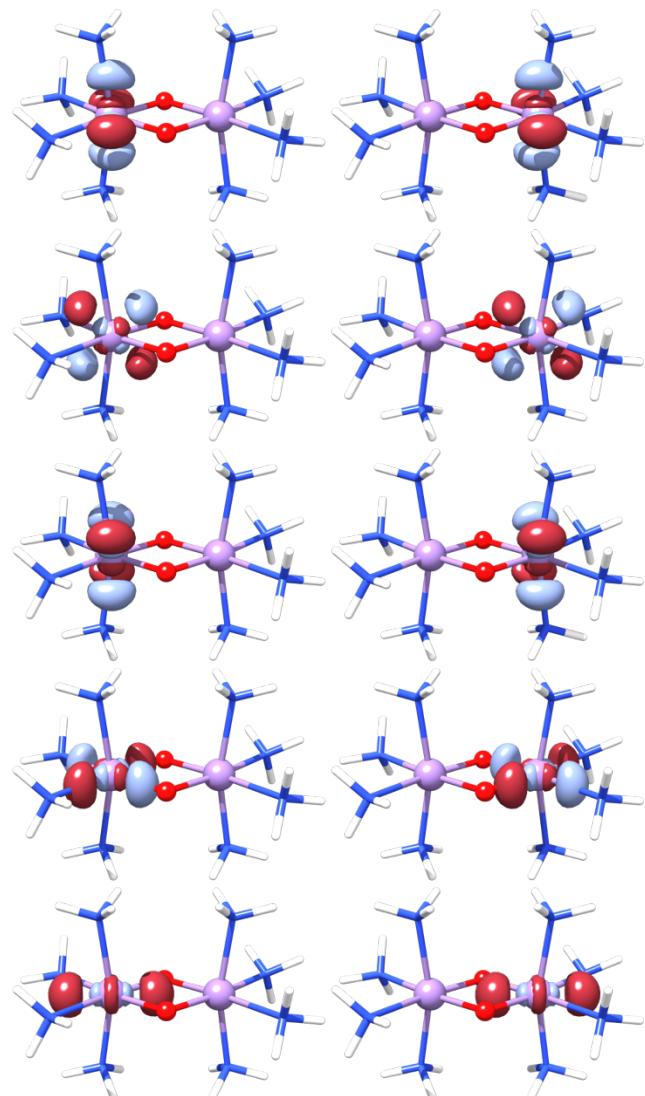
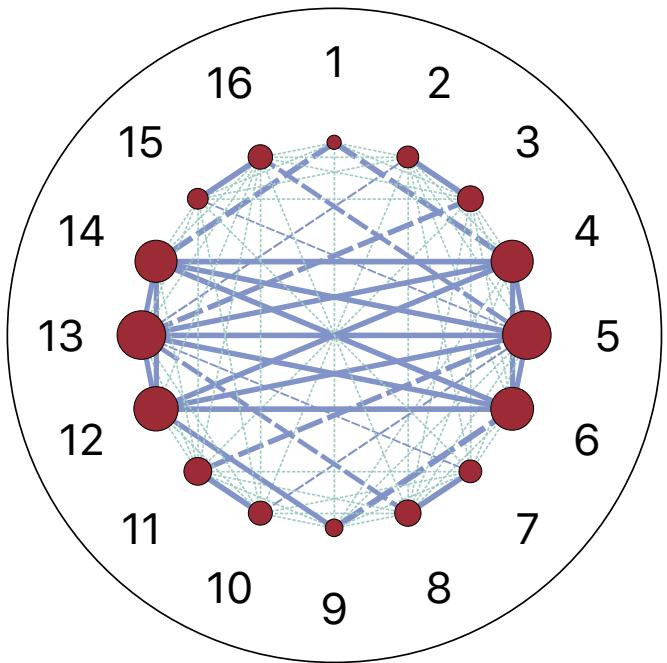
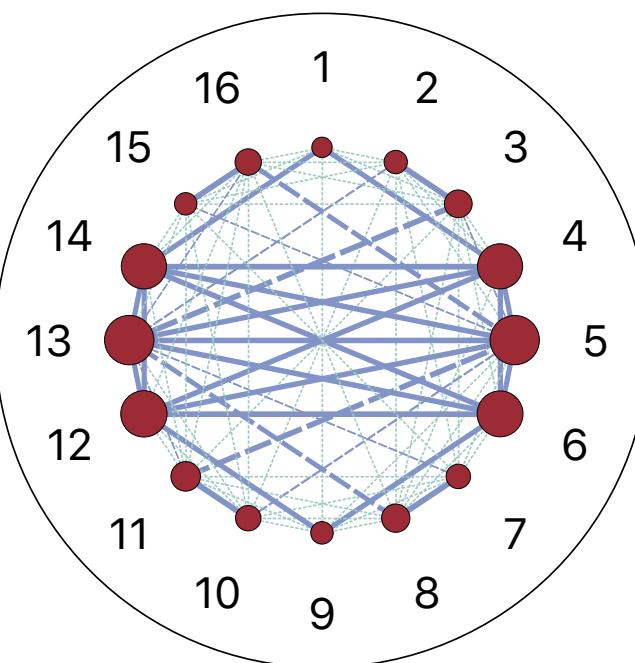


Figure S12. 4d orbitals of the bis- μ -oxo dimer and entanglement diagram including the 4d orbitals.



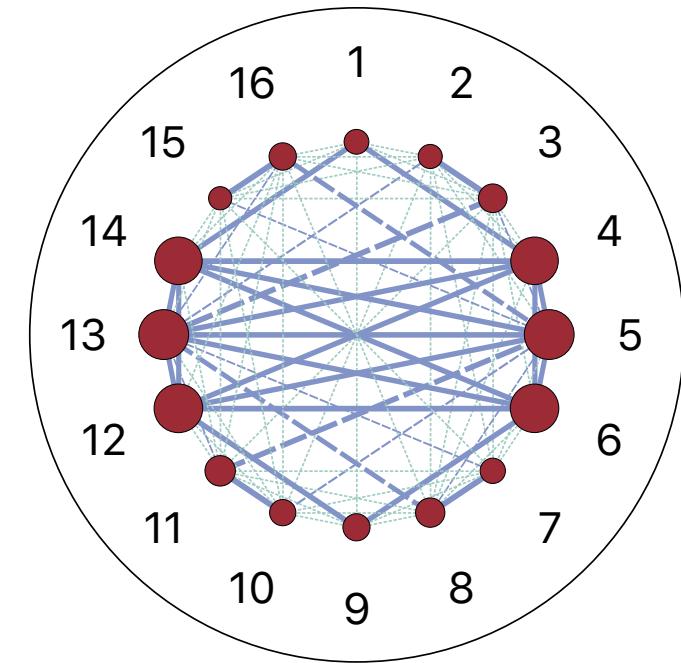
$m = 500$

$$E = -2912.235927 \text{ H}$$



$m = 1000$

$$E = -2912.251965 \text{ H}$$



$m = 2000$

$$E = -2912.259231 \text{ H}$$

Figure S13. Convergence of the DMRG-CI calculation in the localized minimal basis for the bis- μ -oxo dimer with varying maximum bond dimension m .

Table S22. Natural orbital occupation numbers and DMRG-CI occupation numbers obtained from the localized minimal basis ordered according to increasing numbers in each subgroup.

	Natural orbital occupation numbers				DMRG-CI occupation numbers in localized minimal basis			
	singlet	triplet	quintet	septet	singlet	triplet	quintet	septet
oxo p _z	1.94	1.95	1.95	1.95	1.88	1.90	1.91	1.91
	1.95	1.96	1.96	1.96	1.89	1.92	1.92	1.91
σ (Mn-O)	1.81	1.81	1.80	1.78	1.84	1.84	1.83	1.82
	1.84	1.85	1.85	1.84	1.85	1.85	1.84	1.83
	1.86	1.86	1.86	1.85	1.85	1.85	1.85	1.84
	1.90	1.90	1.89	1.88	1.86	1.86	1.86	1.85
Mn (magnetic)	0.86	0.90	0.94	0.99	0.94	0.95	0.97	0.98
	0.86	0.90	0.95	0.99	0.94	0.95	0.97	0.98
	0.93	0.94	0.97	1.01	0.96	1.04	1.04	1.04
	1.07	1.05	1.02	1.02	0.96	1.04	1.04	1.04
	1.18	1.13	1.09	1.02	1.05	1.04	1.04	1.04
	1.19	1.14	1.10	1.03	1.05	1.06	1.05	1.05
σ^* (Mn-O)	0.10	0.11	0.12	0.13	0.17	0.16	0.16	0.16
	0.11	0.11	0.12	0.14	0.18	0.17	0.17	0.17
	0.17	0.17	0.17	0.17	0.19	0.18	0.18	0.18
	0.20	0.20	0.20	0.22	0.20	0.19	0.19	0.19