Supplemental Information for

Charge Transfer during the Dissociation of H_2, and the Charge State of H atoms, in Liquid Gallium

Dulce C. Camacho-Mojica[1], Benjamin Cunning[1], Shahana Chatterjee[1], Sunghwan Jin[1], Feng Ding[1,2], Jean-Christophe Charlier[5], Rodney Ruoff[1,2,3,4, *]

[1] Center for Multidimensional Carbon Materials (CMCM), Institute for Basic Science (IBS), Ulsan 44919, Republic of Korea

[2] School of Materials Science and Engineering, [3] Department of Chemistry, and [4] School of Energy and Chemical Engineering, Ulsan National Institute of Science and Technology (UNIST), Ulsan 44919, Republic of Korea

[5] Institute of Condensed Matter and Nanosciences, Université catholique de Louvain, Chemin des étoiles 8, B-1348 Louvain-la-Neuve, Belgium

Correspondence to: rsruoff@ibs.re.kr or ruofflab@gmail.com.

Contents table

Electronic density distributions along the trajectory and Bader charges

Dissociation of the H_2 Molecule

INCAR file S1 VASP input file used for the molecular dynamics simulation

INCAR file S2 VASP input file use for the single point calculation.

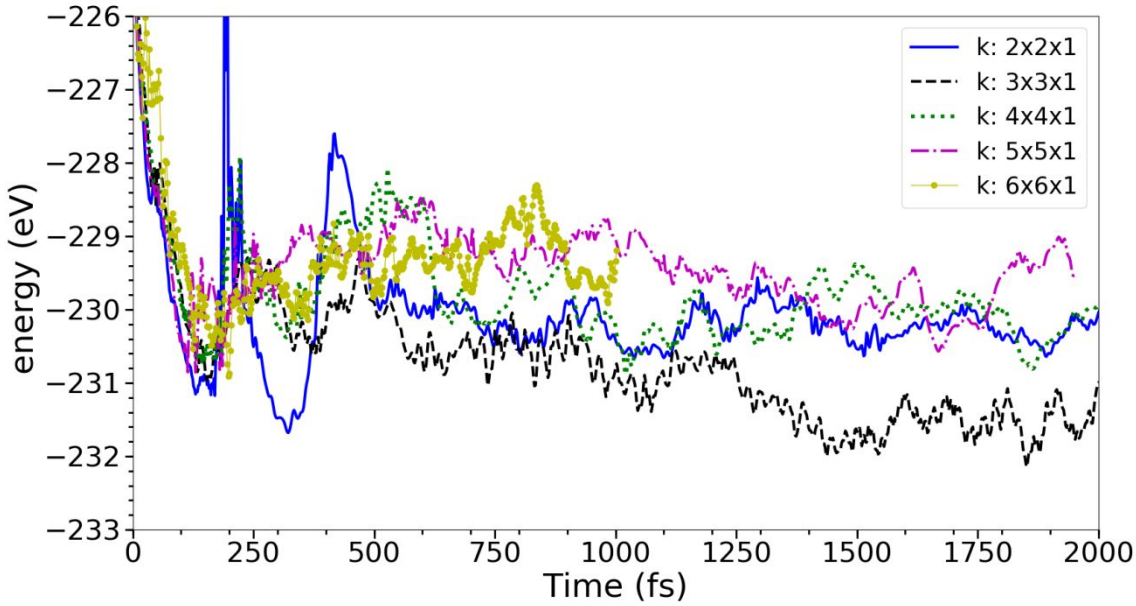

Figure S1 Convergence test: Energy of the ion electron system for the first 2 picoseconds. (1ps for 6x6x1 k mesh) In this work we have used a 5x5 k point mesh, and considering that every trajectory is different the range of energies for the simulation 6x6x1 and 5x5x1 is similar.

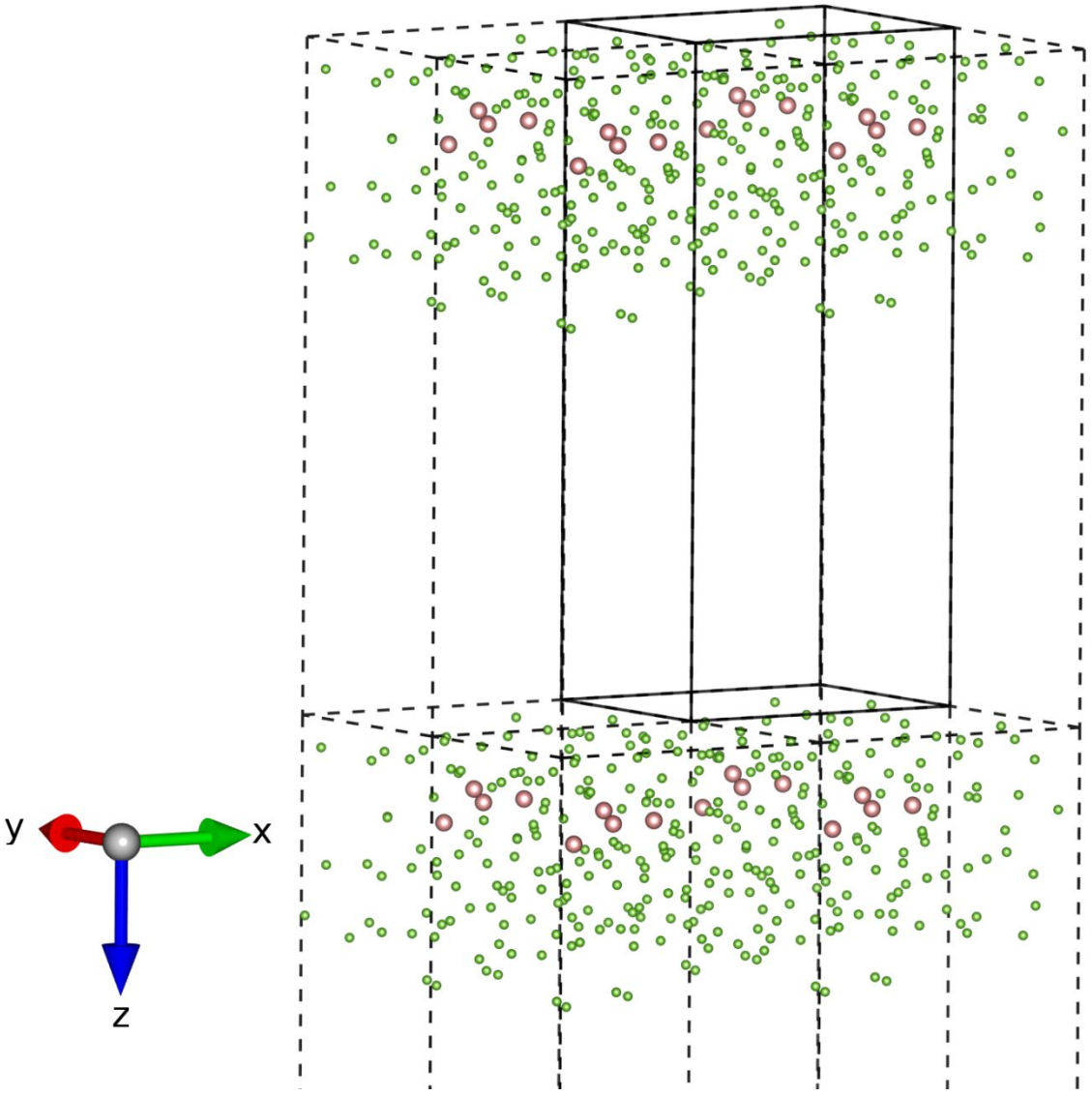

Figure S2. Super cell. The simulation box is shown with solid lines, dashed lines are repetition of the super cell at left, in front, and down, as an example. The periodic boundary conditions in three dimensions produce infinite repetitions of the supercell resulting in infinite two-dimensional slabs of liquid Ga.

Note S1. Digallane molecule and analogues from group 13.

Group 13 is the first periodic group containing post transition group elements, and in their elemental form they are metals (although B in certain allotropes might better be described as a semi-metal) and they are electropositive (tending to lose electrons rather than gaining them in chemical reactions). To study the charge transfer between these elements and hydrogen, we first calculated the Bader charges for the atoms in digallane, $GaH_2(H_2)GaH_2$ (see **Figure Sa** and analogous X_2H_6 molecules from group 13 **Figure S1**). **Figure 1b** shows the electronic charge distribution in the digallane molecule. Note that the 6 H atoms are 'covered' by a cloud of electrons**.** In a cross-section analysis of the electronic density **figure 1c** and **d**, we observe that the density of valence charge is highest close to the H atoms and lowest around the Ga atoms. the Bader charges are presented in (**Table S1**).

Atom	B_2H_6	Al_2H_6	Ga_2H_6	In_2H_6	Tl_2H_6
1	1.73	2.15	0.97	0.94	0.50
2	1.72	2.15	0.97	0.94	0.51
3	-0.56	-0.68	-0.29	-0.35	-0.18
4	-0.56	-0.68	-0.29	-0.35	-0.18
5	-0.56	-0.68	-0.29	-0.35	-0.18
6	-0.56	-0.68	-0.29	-0.35	-0.18
7	-0.60	-0.78	-0.38	-0.24	-0.14
8	-0.61	-0.79	-0.38	-0.24	-0.14

Table S1. Bader charges of each atom in digallane and its B, Al, In, and Tl analogs. Atoms 1 and 2 are B (or Al, Ga, In, or Tl) and 3 to 8 are H (see **figure 1(a)** for a schematic).

Table S1 shows the Bader charges for the eight atoms in digallane and its group 13 analogs. All the elements donate charge to hydrogen but in different amounts. The order of charge donation is Al > B > Ga > In > Tl. Atoms 3 to 6 are terminal hydrogen while 7 and 8 are hydrogens forming bridge bonds. Bridge bonds should not be considered as two independent bridge bonds as electronic density indicates electron transfer between all 4 atoms in the double bridge. (see **Figures 1d** and **S1**). In the case of B, Al, and Ga the terminal hydrogen atoms have less charge than the hydrogens in bridge bonds, while for In and Tl the opposite is obtained. In all cases, the terminal bonds are shorter than the bridge bonds. For digallane, we obtained Ga - H_T 1.562 Å, Ga - H_B 1.768 Å, H_T - H_T 2.850 Å, and H_B - H_B 2.382 Å.

Figure S3 shows the calculated radial distribution function (RDF) of the digallane molecule using MD (373 K) and compares it with the equilibrium distances from density functional theory (DFT, 0 K). The H-Ga and Ga-Ga distances are quite similar across the MD and DFT calculations. The broadening of peaks in the RDF reflects the bond stretching, bond bending, and bond torsion that occurs during MD.

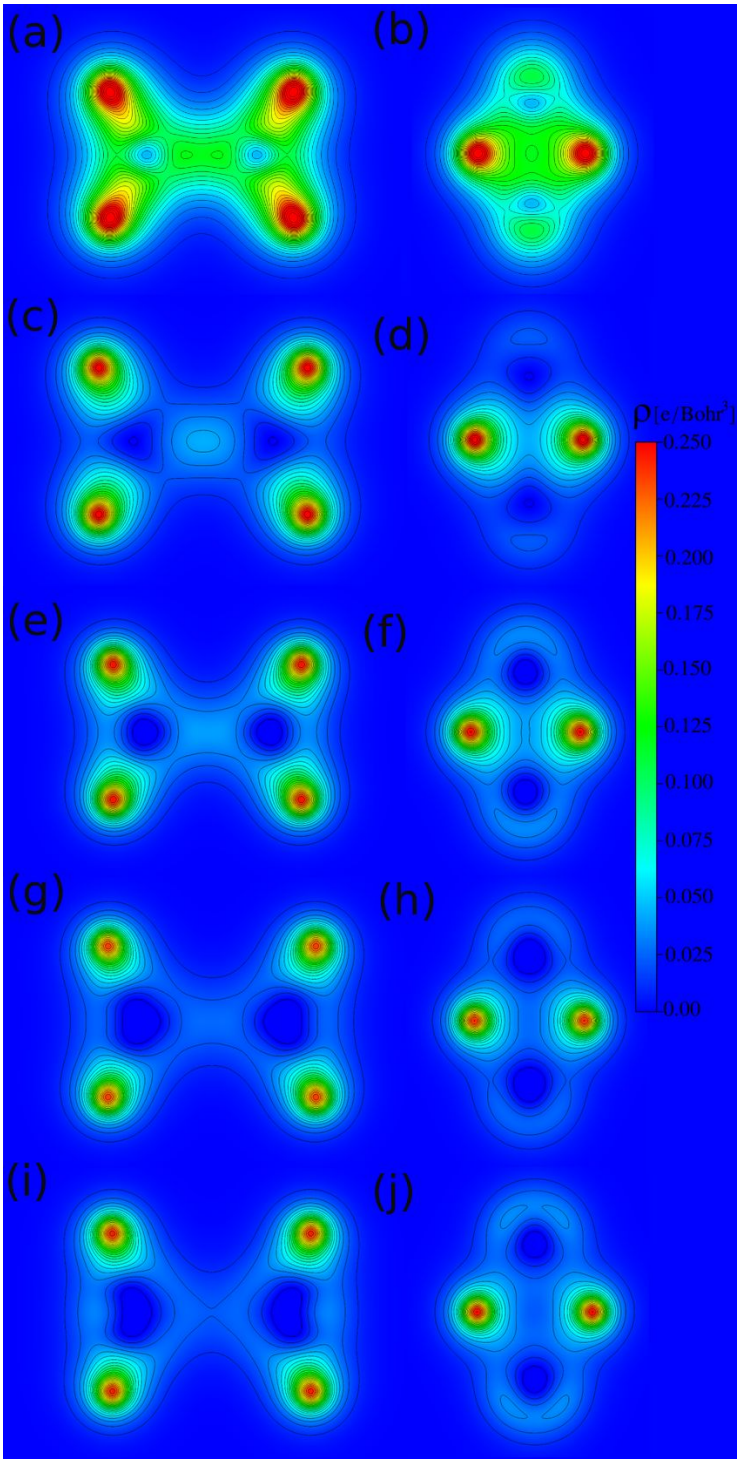

Figure S3. Contour maps of electronic valence density for group 13 X_2H_6 molecules where X is (a, b) boron, (c, d) aluminum, (e, f) gallium, (g, h) indium and (i, j) thallium. Images on the left are cuts through the σ_v(xy) plane (this plane contains 4 terminal hydrogen and two group 13 atoms), while images on the right show cuts through the σ'_v(yz) plane (this plane contains the double bridge bond with two hydrogens and two group 13 atoms). Contour lines represent intervals of 0.01 a.u.

Note S2. Radial Distribution Function

The radial distribution function (RDF) is a statistical distribution that details how the density changes as a function of distance from a reference particle. In our simulation, the RDF is normalized considering the volume of the simulation box (V) and the number of species (N). It represents the probability of finding an atom at a distance "r" from the other atom that forms the pair. The interaction between pairs of atoms results in a series of peaks in the RDF where the first peak represents the "first neighbors" of each pair.

The region between the first peak onset and its minima is the first coordination shell. As first neighbors have the lowest degrees of freedom, the first peak displays the highest intensity and narrowest width. The second coordination shell is defined from the first minima to the second minima, and so on. At each successive coordination shell, the degree of freedom increases, resulting in peak broadening and lower intensity.

The onset distance of the first coordination shell is termed R_0 and represents the hard sphere radii. This is the minimum distance that fermions can approach due to short range electrostatic repulsion from core electrons. The maxima (or mode) of the first coordination shell, R_{max}, represents the equilibrium distance between pairs and depends on the orbital hybridization of the interacting particles. The sum of R_{max} in covalent bonded particles is the bond length. The right part of the first coordination shell, (measured by the location of the median) is dependent on the temperature. The value where the first coordination shell ends, is the maximum length of a bond.

Figure S5 shows the calculated RDF of Ga-Ga pairs from our Ga-H system for comparison with an experimentally determined Ga-Ga RDF at 373 K. [10] We found a value of R_0 in our simulation at 2.62Å compared to 2.58Å from experiment. The maximum for first neighbors was found at 2.79Å in our calculations and reported as 2.84Å in the experiment. The first inflection point of the integrated RDF represents the mean radii of the first coordination shell; it was found at 2.97Å and experimentally determined as 2.97Å. The second inflection point in the integral represents the limit of the first coordination shell, in our MD it is found at 3.72Å and the integral of g(r) evaluated at this point represents the coordination number. We found a value of 10.0 which matches the experimental value of 10.0. The close match between our MD calculations and the experimental results validates the accuracy of our MD approach.

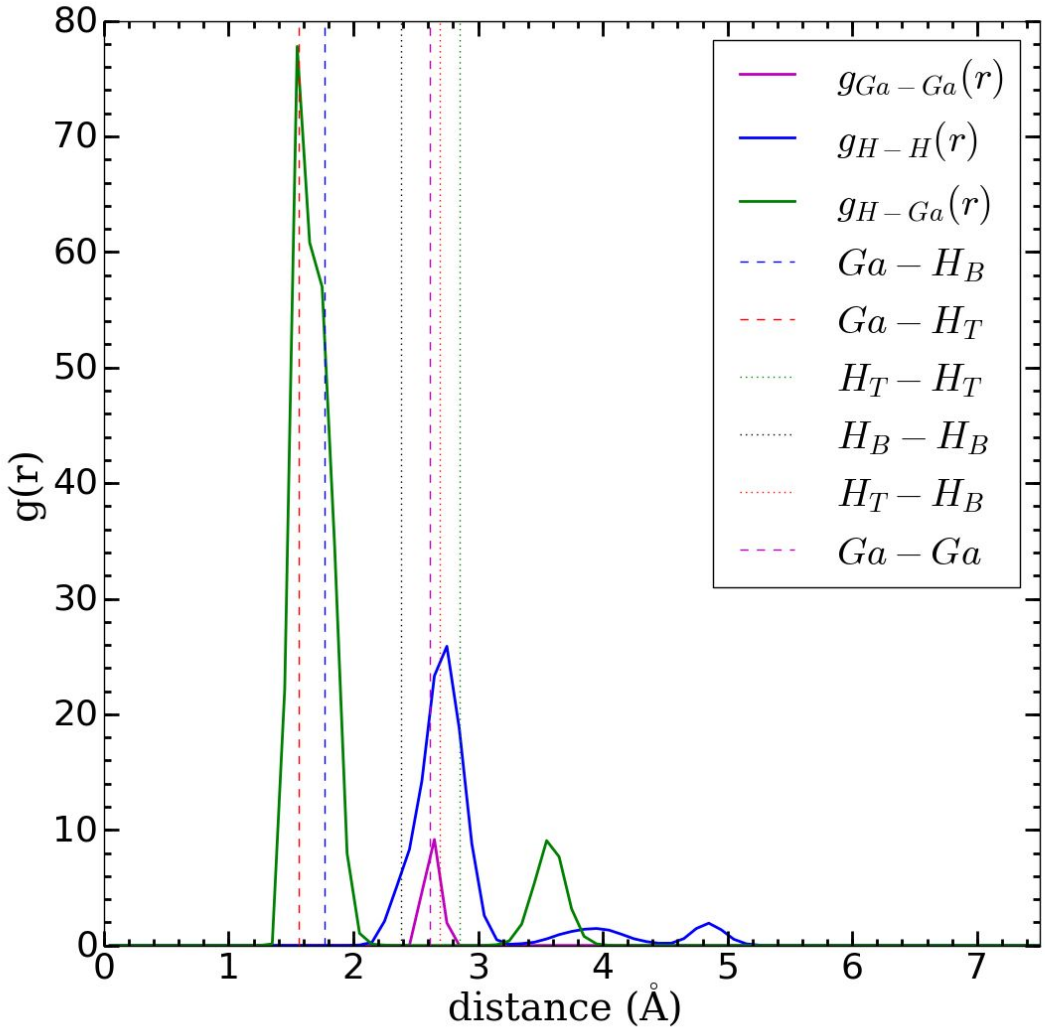

Figure S4. Radial distribution function of an isolated digallane molecule from an MD trajectory at 373 K (solid lines), and equilibrium distances obtained during ground state DFT simulations (dashed lines). Note that the equilibrium distances found at 0K are in excellent agreement with the maxima of peaks representing the distances with the highest probability to find a pair of atoms.

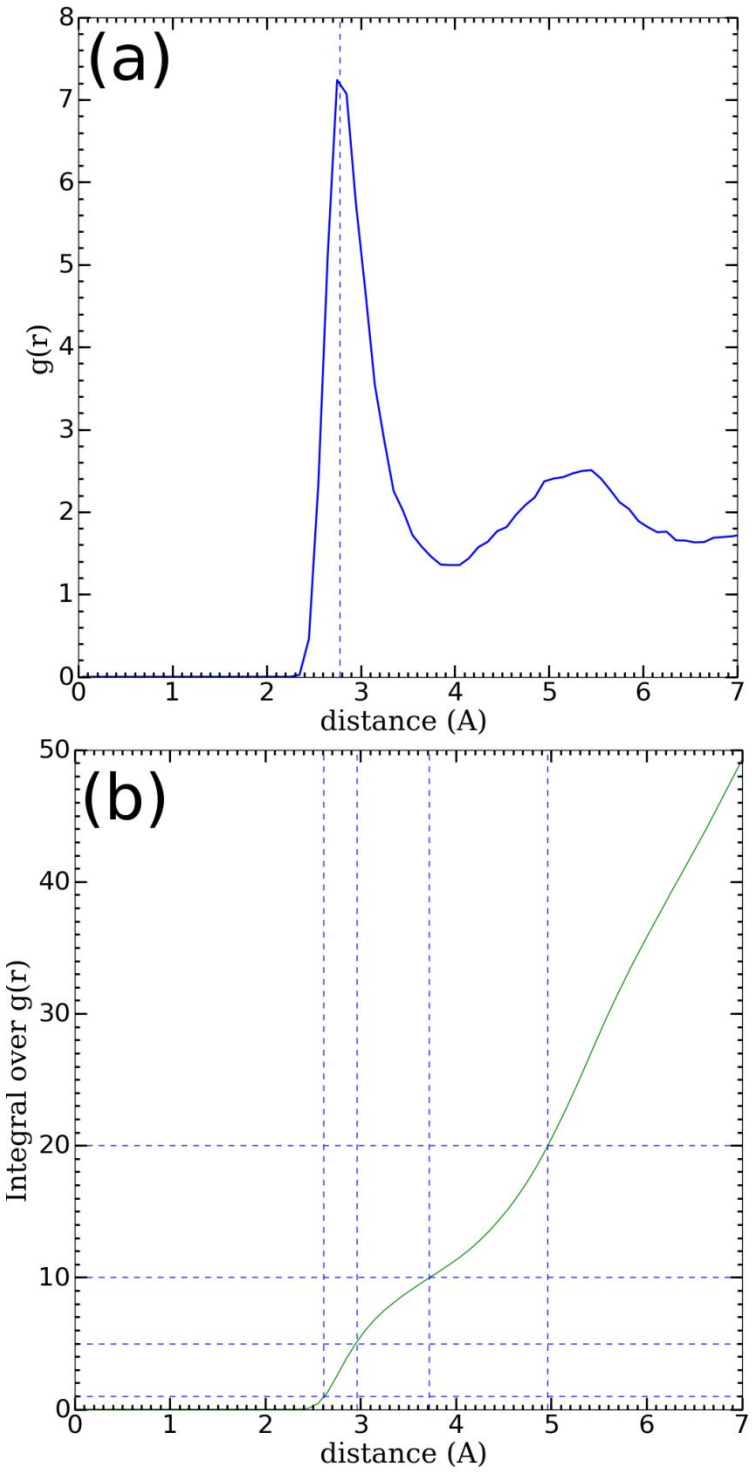

Figure S5. **(a)** Radial distribution function for Ga-Ga pairs during the entire trajectory of our gallium - hydrogen MD simulation. **(b)** Integral of the RDF shown in Figure **(a).** These values match well with reported experimental values[33]. $R_{0\text{-}MD}$ 2.62 Å and $R_{0\text{-}Exp}$ 2.58 Å, $R_{max\text{-}MD}$ 2.79 Å and $R_{max\text{-}Exp}$ 2.84 Å.

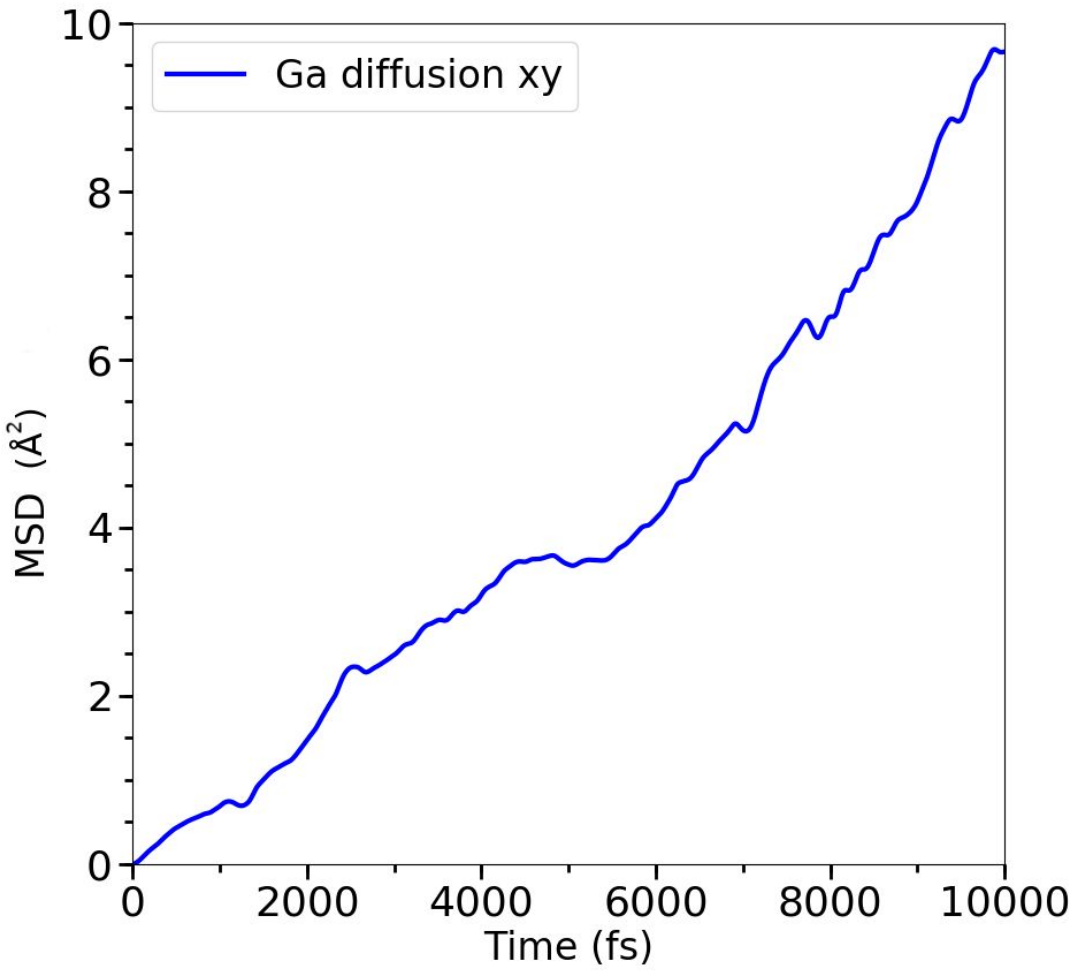

Figure S6 Mean square displacement as function of time for the annealed gallium liquid slab considering displacement in the x and y directions. The linear behavior confirms the liquid state of gallium. A diffusion coefficient of 3.28 x10^{-5} cm^2/s is obtained if the slope from 5 ps to 10 ps is used, and 2.08x10^{-5} cm^2/s if the slope from the entire plot is used. These values are in the range of the reported experimental and theoretical values, in [Ref S1].

Trajectory

Video S1. Complete MD trajectory at 373 K of a liquid gallium cluster composed of 80 atoms (green: Ga and pink: H). At the lower left corner, the number of frames is indicated where each frame is taken at 2 fs intervals. Time evolution: One H_2 molecule remained inside the cavity until 200 fs (frame 100); the H_2 then dissociated and the four H atoms dispersed into the liquid, while the cavity disappeared. The four hydrogens then moved towards the liquid surface. H1 moved to the lower surface while H2, H3, and H4 moved to the upper surface. Each hydrogen interacted with one or more Ga neighbors during the movement. (Entire trajectory of 4742 fs (2371 frames)).

CIF files.

CIF files can be visualized with software like VESTA (http://jp-minerals.org/vesta/en/download.html), Jmole, and Avogadro.

CIF file S1. Atomic positions at 160 fs, before the H_2 molecule dissociates.

CIF file S2. Atomic positions at 400 fs, after H_2 dissociates, and before H1 reaches the lower surface.

CIF file S3. Atomic positions at 3300 fs. Atomic positions are showing a double bridge formed by H2 and H4 between Ga4 and Ga6, which is analogous to digallane.

CIF file S4. Atomic positions at 4400 fs. Atomic positions are detailing Ga6 forming two terminal bonds with hydrogens H2 and H4 protruding from the surface.

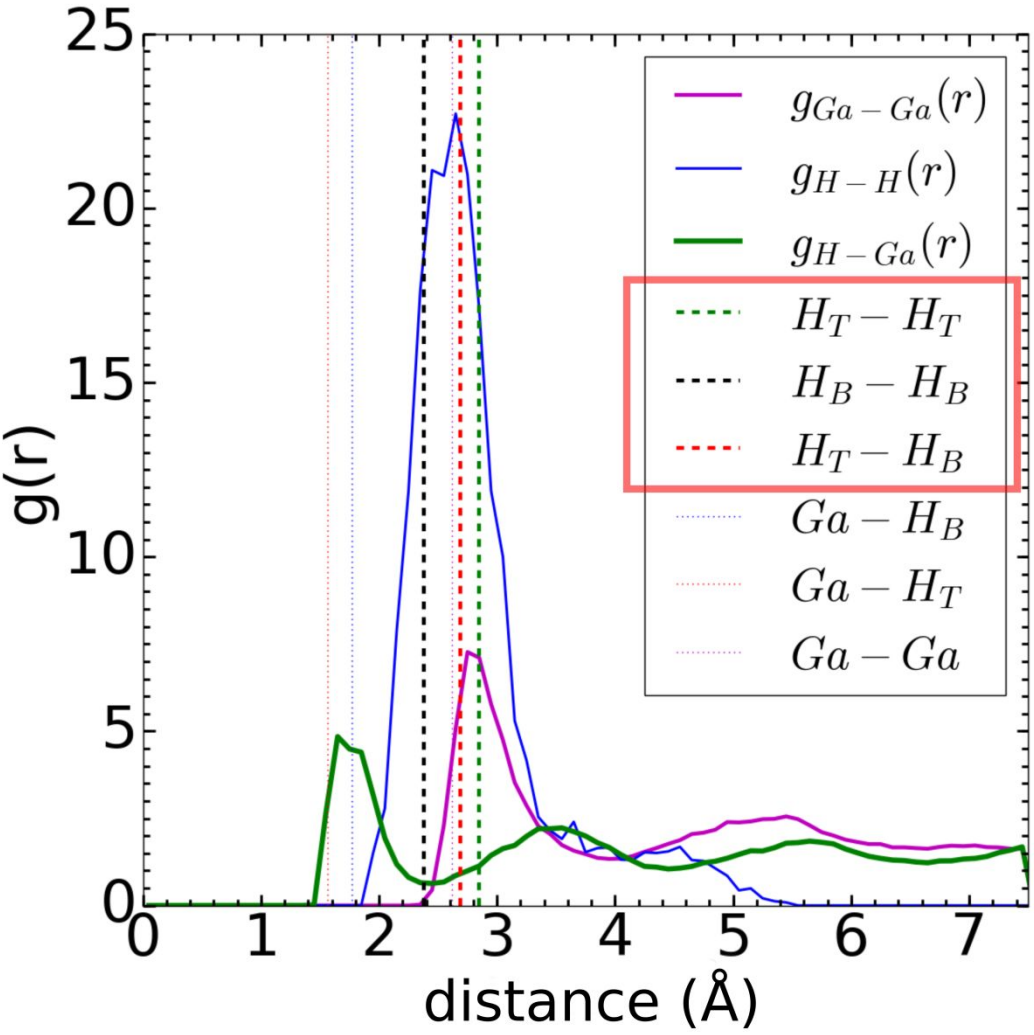

Figure S7. Radial distribution functions of the Ga-H MD trajectory excluding the first 200 fs at 373 K (solid lines), and equilibrium distances of digallane obtained during ground state (0 K) DFT simulations (dashed lines). Note that the peaks representing the highest probabilities to find an H-H pair in our MD trajectory are in good agreement with the calculated equilibrium distances for hydrogens in the digallane molecule.

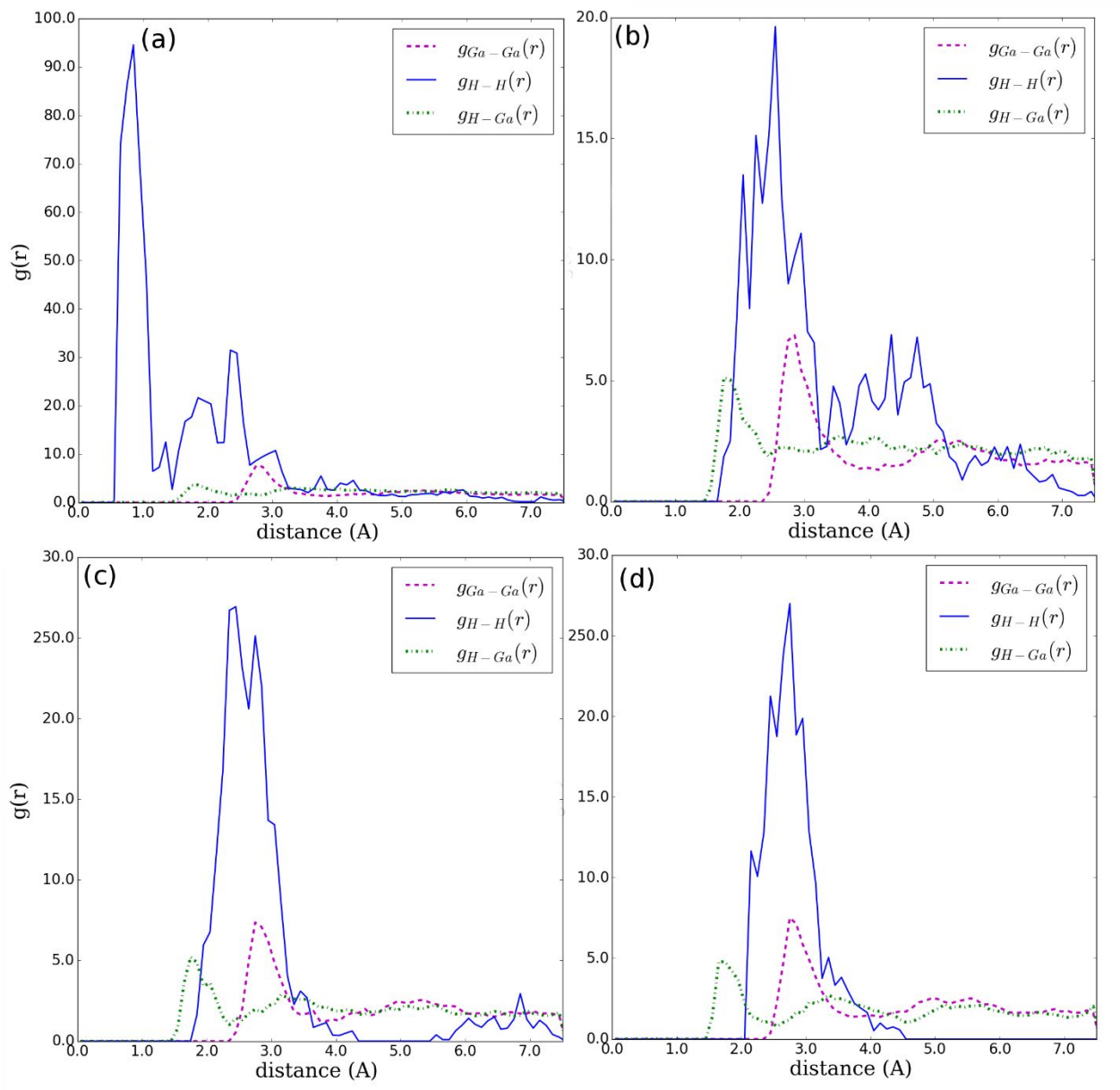

Figure S8. Radial distribution functions of the Ga – H MD trajectory from **(a)** 0fs to 400fs, **(b)** 400fs to 800fs, **(c)** 800fs to 1200fs, and **(d)** 1200fs to 1600fs.

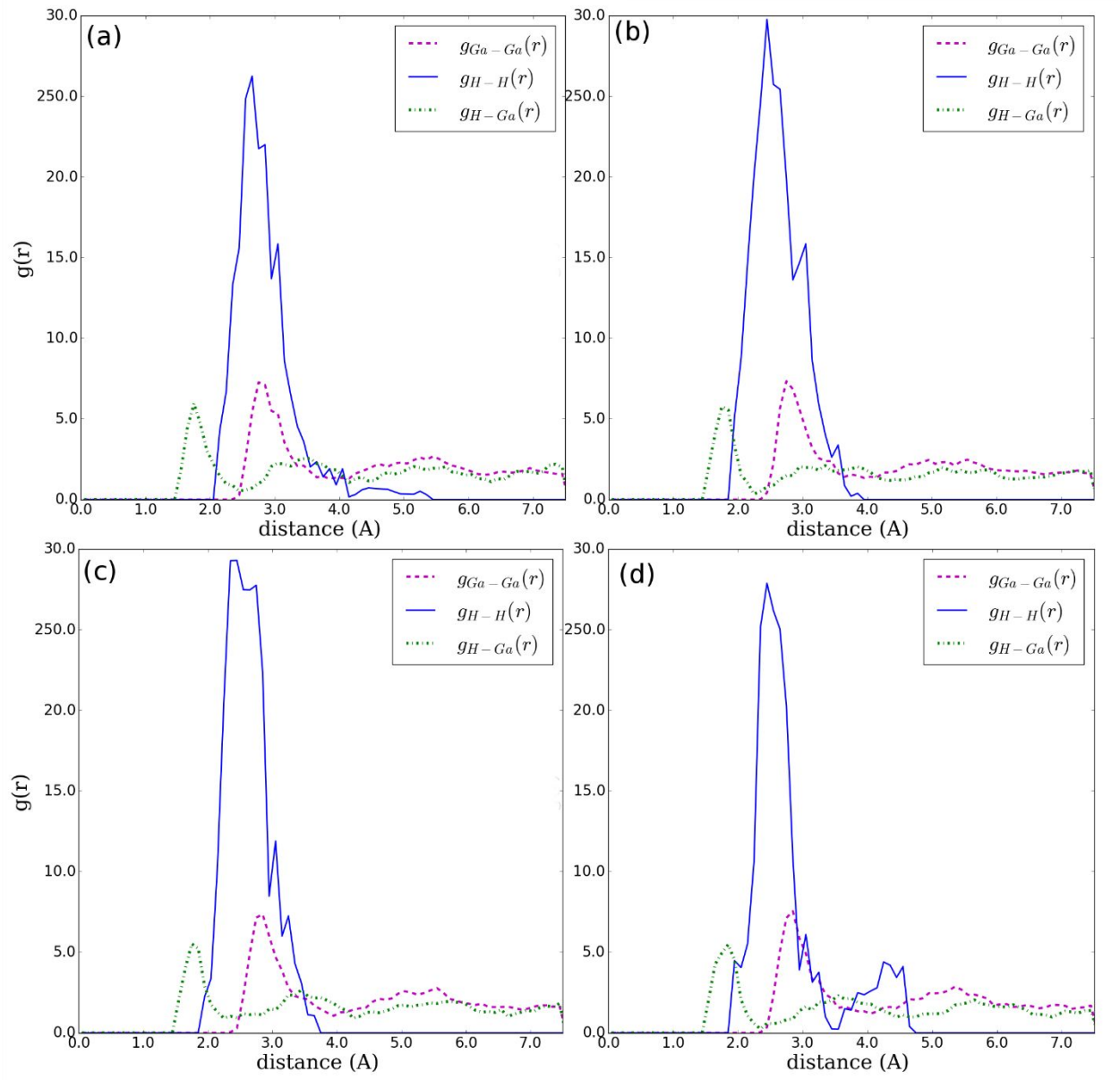

Figure **S9.** Radial distribution functions of the Ga – H MD trajectory from **(a)** 1600fs to 2000fs, **(b)** 2000fs to 2400fs, **(c)** 2400fs to 2800fs, and **(d)** 2800fs to 3200fs.

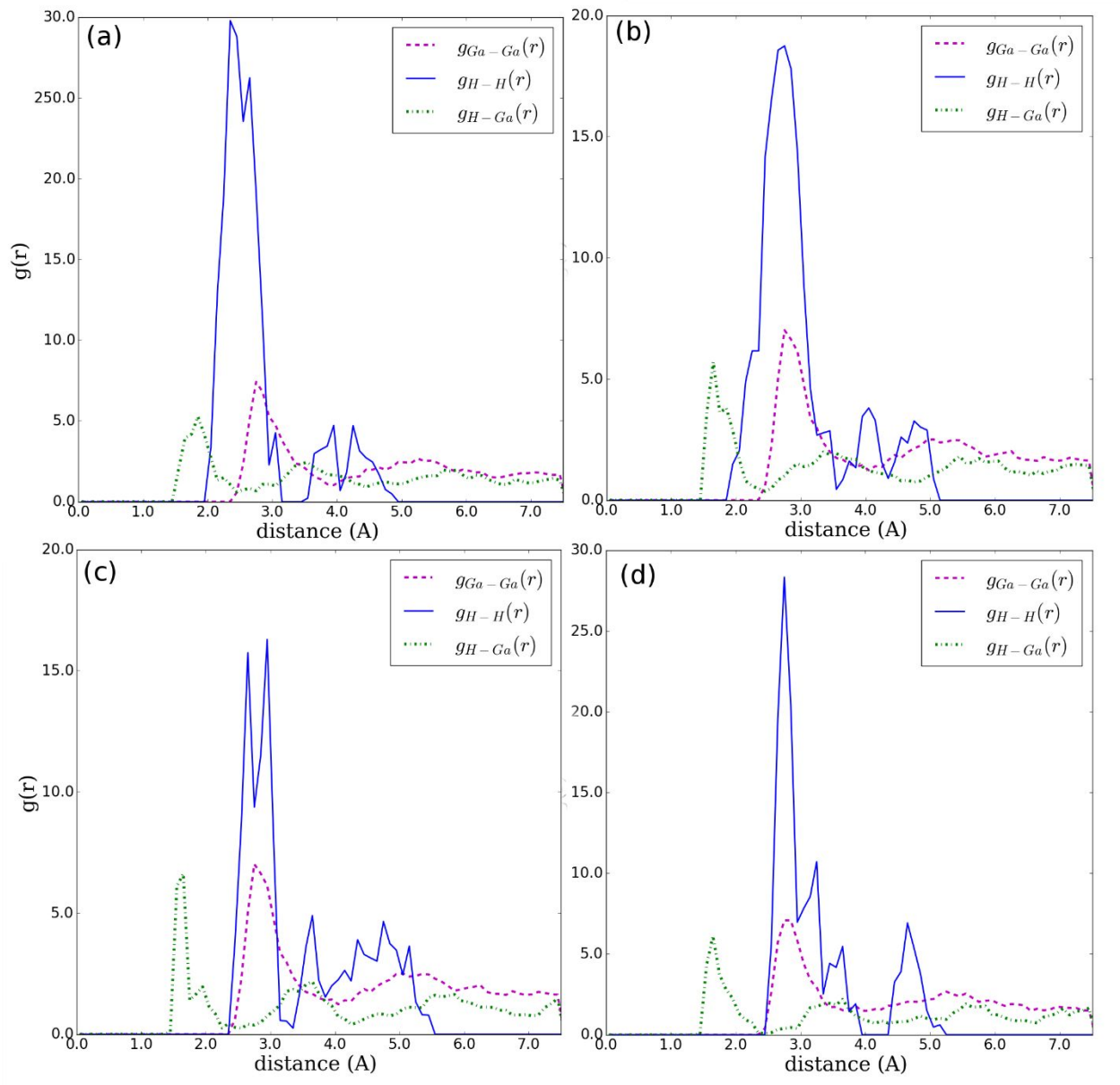

Figure **S10.** Radial distribution functions of the Ga – H MD trajectory from **(a)** 3200 fs to 3600 fs, **(b)** 3600 fs to 4000 fs, **(c)** 4000 fs to 4400 fs, and **(d)** 4400 fs to 4678 fs.

Electronic density distributions along the trajectory

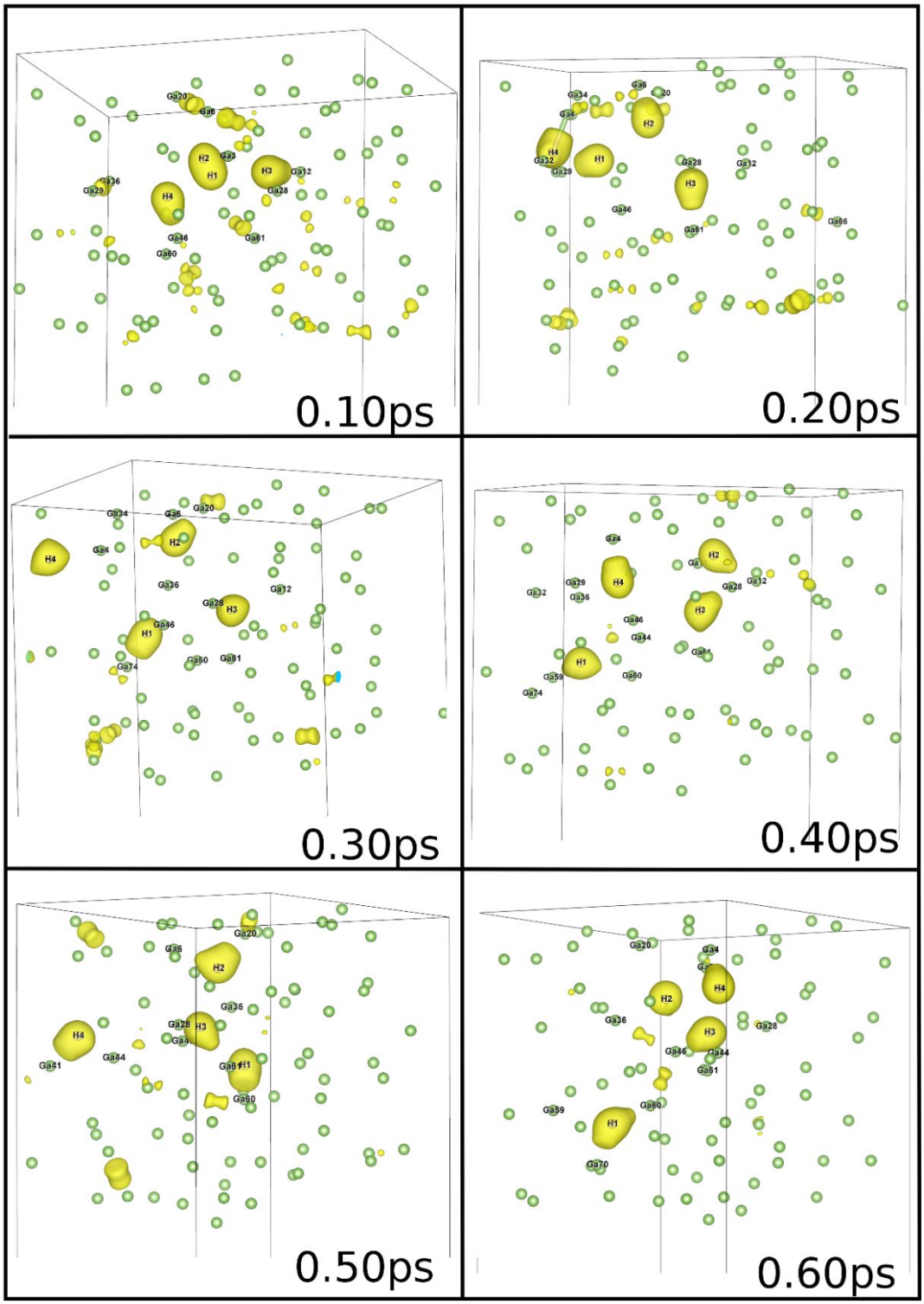

Figure S11. Snapshots of the electronic density at 0.042 e/Bohr^3 during the trajectory from 100 fs to 600 fs. We observed initially one H_2 molecule at 100fs which dissociated before 200fs. Bader charges for these snapshots are in **tables S2**, and **S3**.

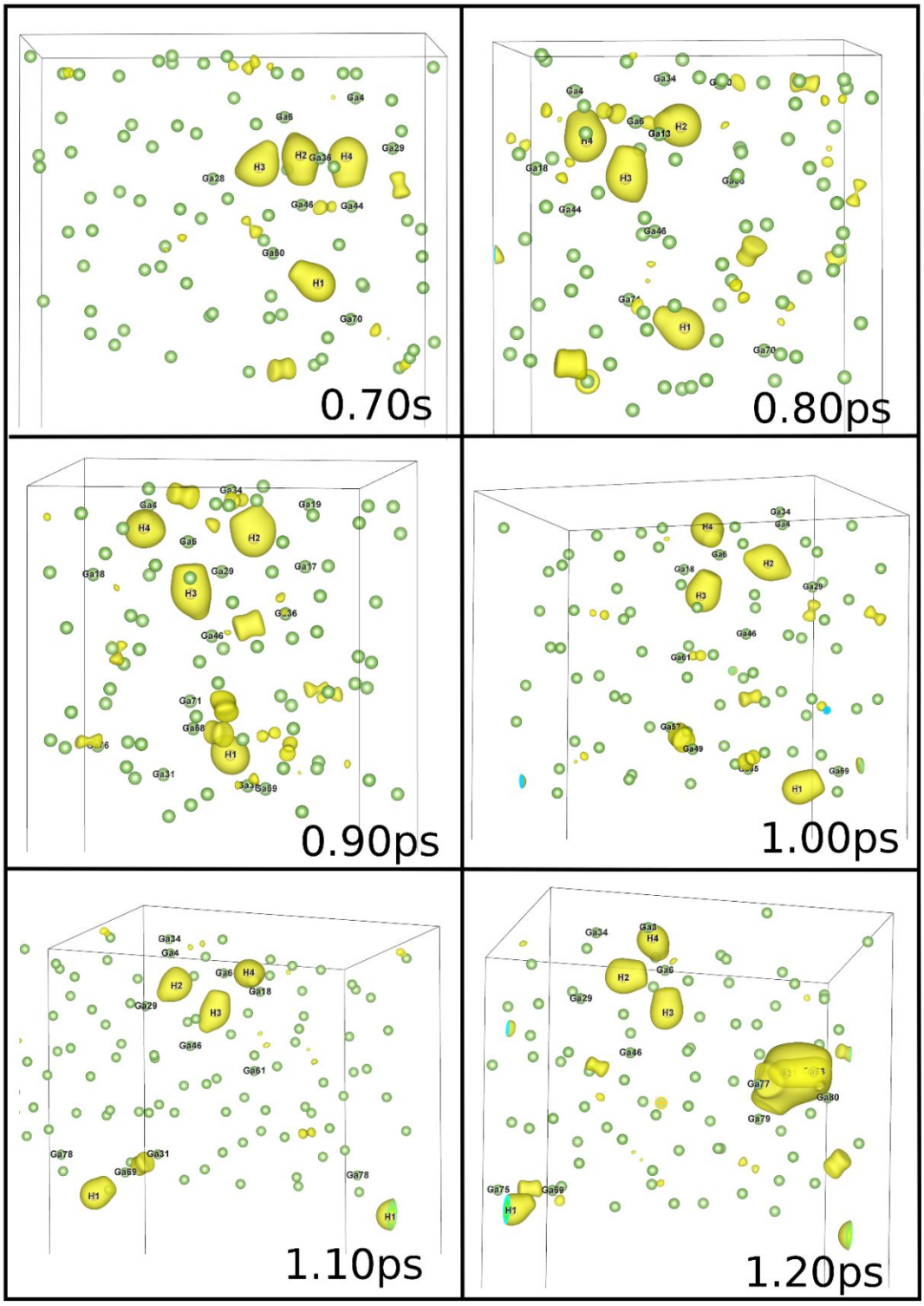

Figure S12. Snapshots of the electronic density at 0.042 e/Bohr^3 during the trajectory from 700 fs to 1200 fs. We observed H1 move to the bottom liquid surface while H2, H3, and H4, moved to the top surface. From 1.0 - 1.2 ps, H2, H3, and H4 shared the same neighbor (Ga6). Bader charges for these snapshots are in **tables S2** to **S5.**

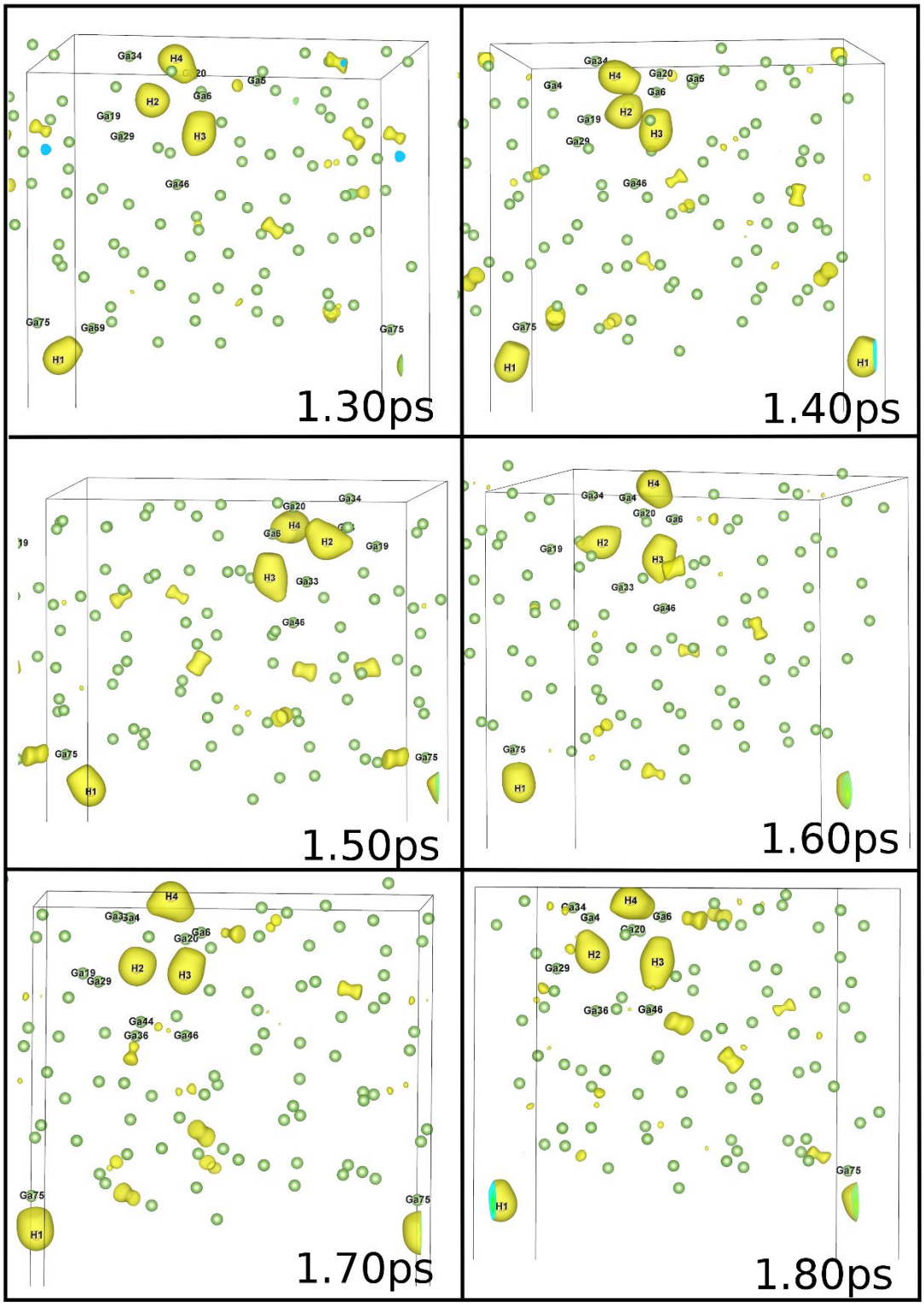

Figure S13. Snapshots of the electronic density at 0.042 e/Bohr^3 during the trajectory from time 1300fs to 1800fs with electronic density isosurfaces of 0.042 e/Bohr^3. In these frames we observed curved H_B bonds (e.g., H4 1.70ps, H2 1.5ps). Bader charges for these frames are in **tables S4**, and **S5**.

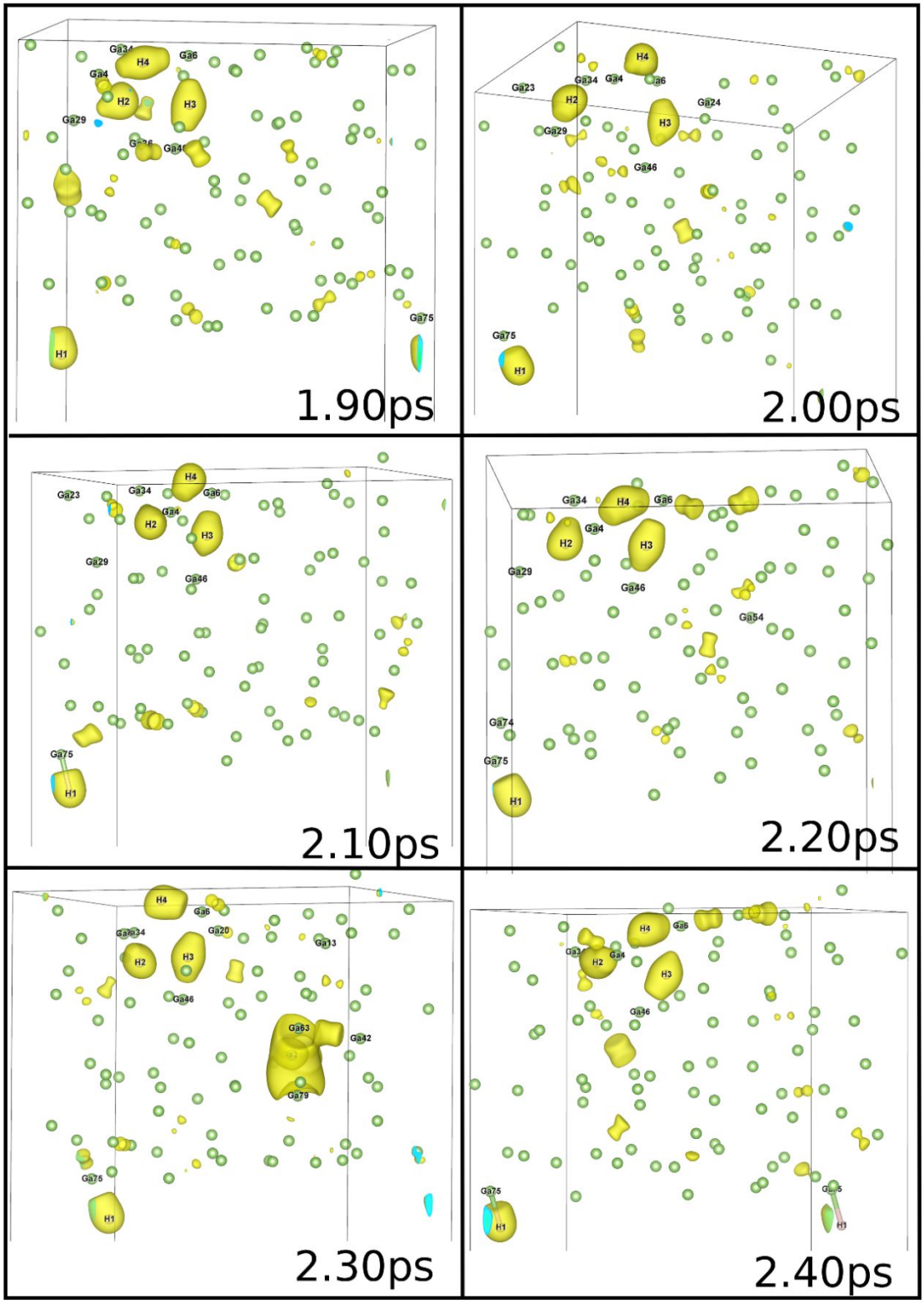

Figure **S14**. Snapshots of the electronic density at 0.042 e/Bohr^3 for the trajectory from time 1900fs to 2400fs with electronic density isosurfaces of 0.042 e/Bohr^3. Bader charges for these frames are in **tables S4** to **S7**.

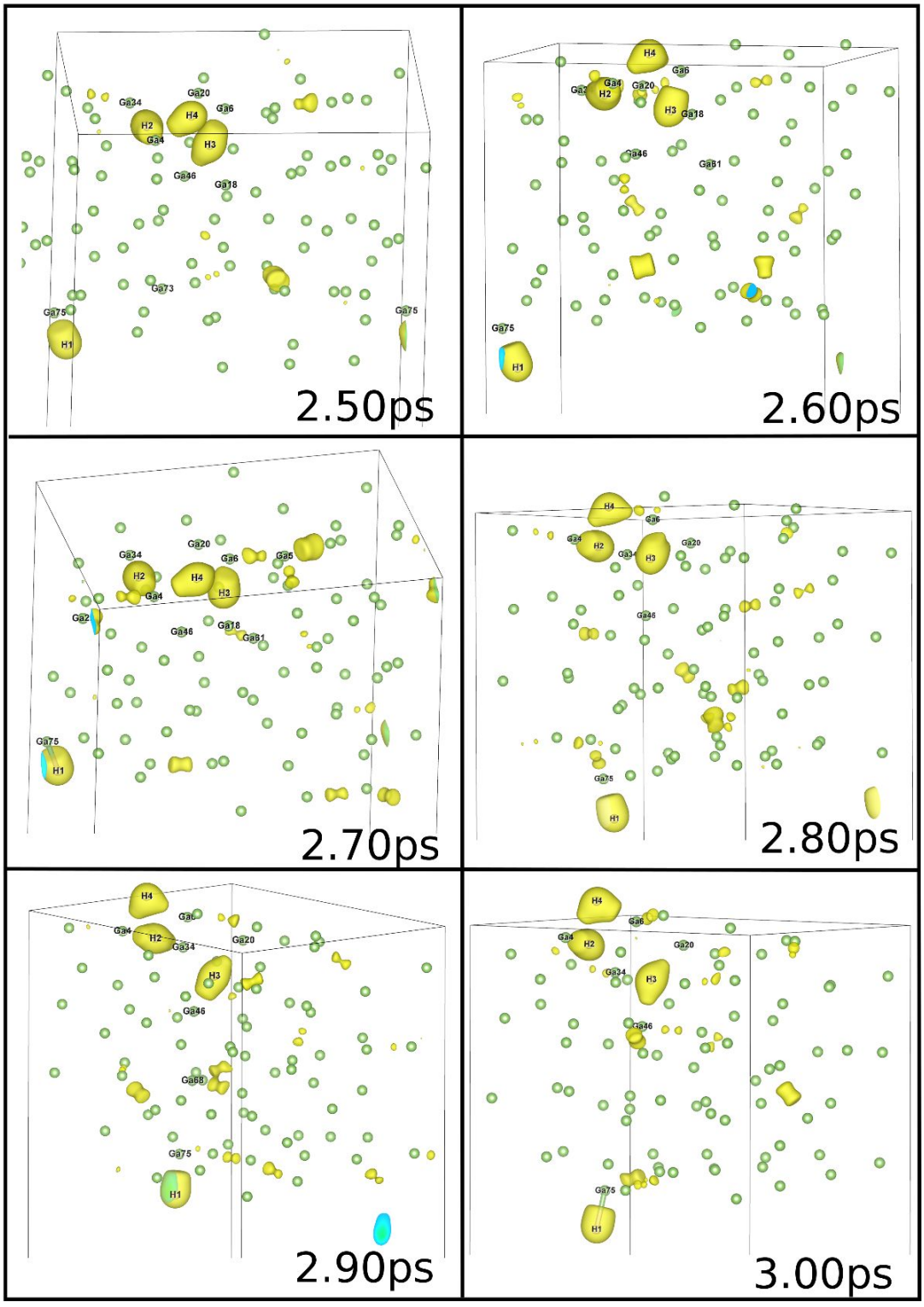

Figure **S15**. Snapshots of the electronic density at 0.042 e/Bohr^3 for the trajectory from time 2500fs to 3000fs with electronic density isosurfaces of 0.042 e/Bohr^3. Bader charges for these frames are in **tables S6,** and **S7**.

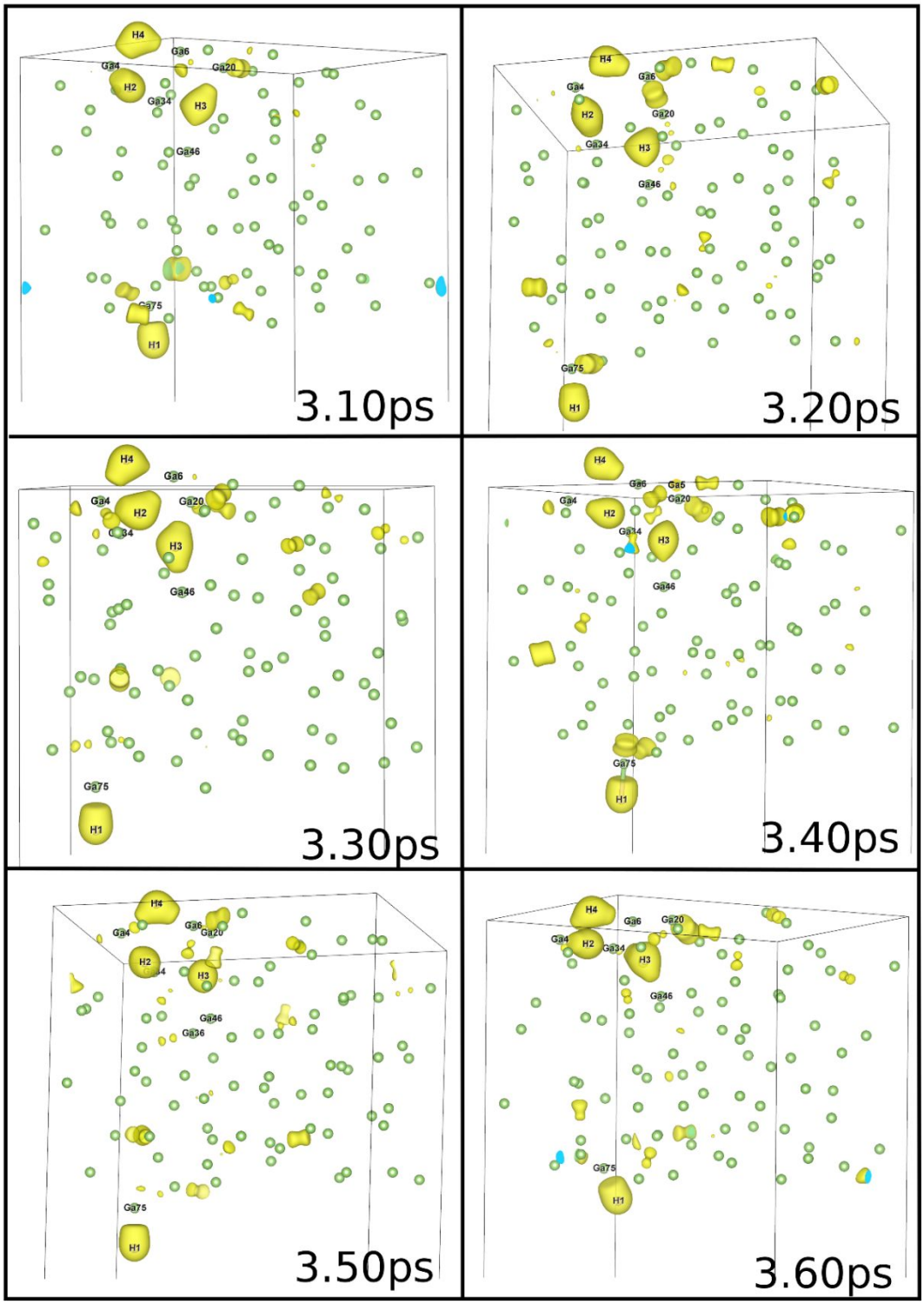

Figure **S16**. Snapshots of the electronic density at 0.042 e/Bohr^3 for the trajectory from time 3100fs to 3600fs with electronic density isosurfaces of 0.042 e/Bohr^3. At 3.30 ps atoms Ga6, Ga4, H2, and H4 formed a double hydrogen bridge bond similar to the bonding seen in digallane. Bader charges for these frames are in **tables S9**, and **S9**.

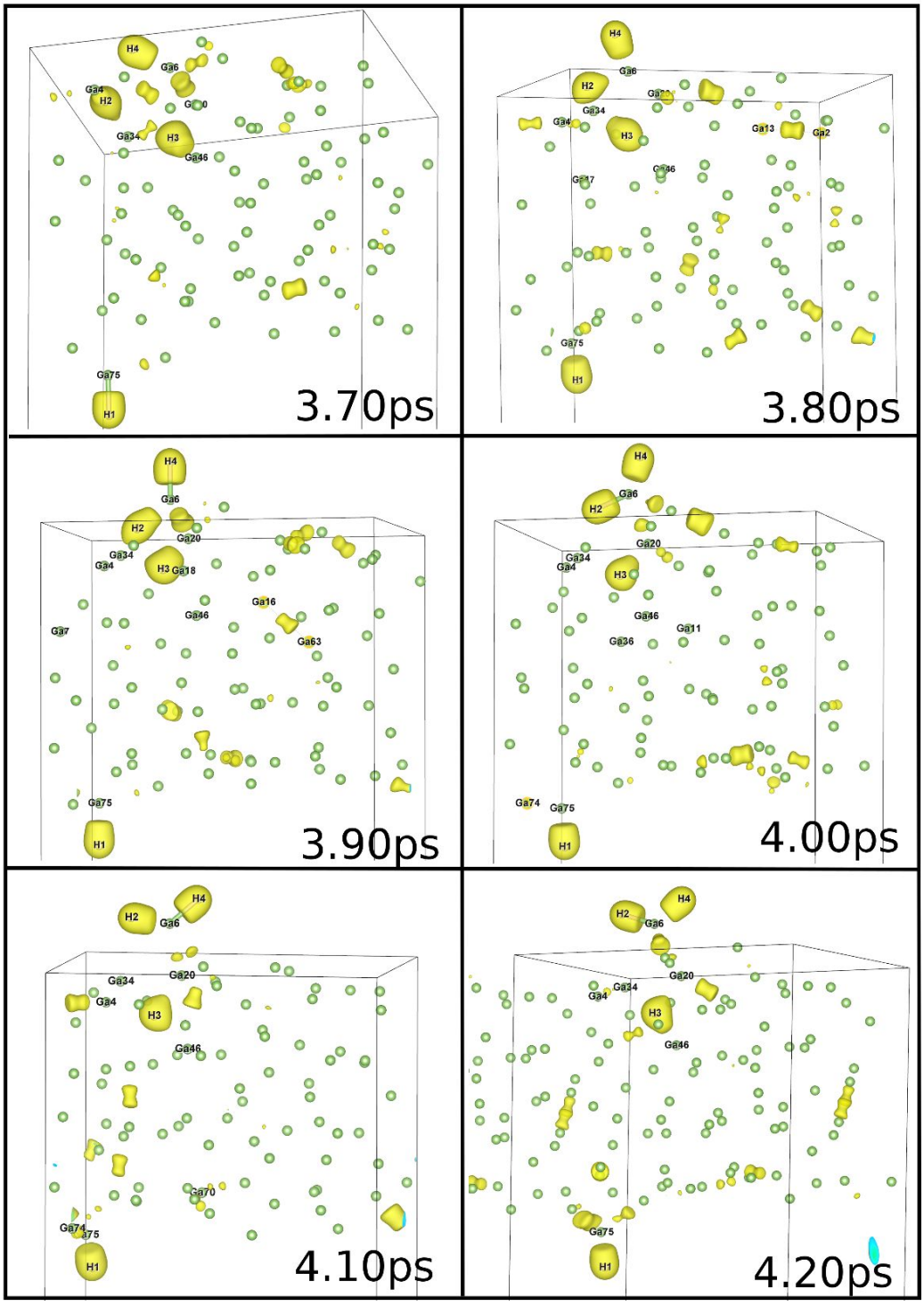

Figure **S17**. Snapshots of the electronic density at 0.042 e/Bohr^3 for the trajectory from time 3700fs to 4200fs with electronic density isosurfaces of 0.042 e/Bohr^3. At 4.0ps atoms Ga6, H2, and H4 formed a structure that protrudes through the liquid surface. Bader charges for these frames are in **tables S8** to **S11**.

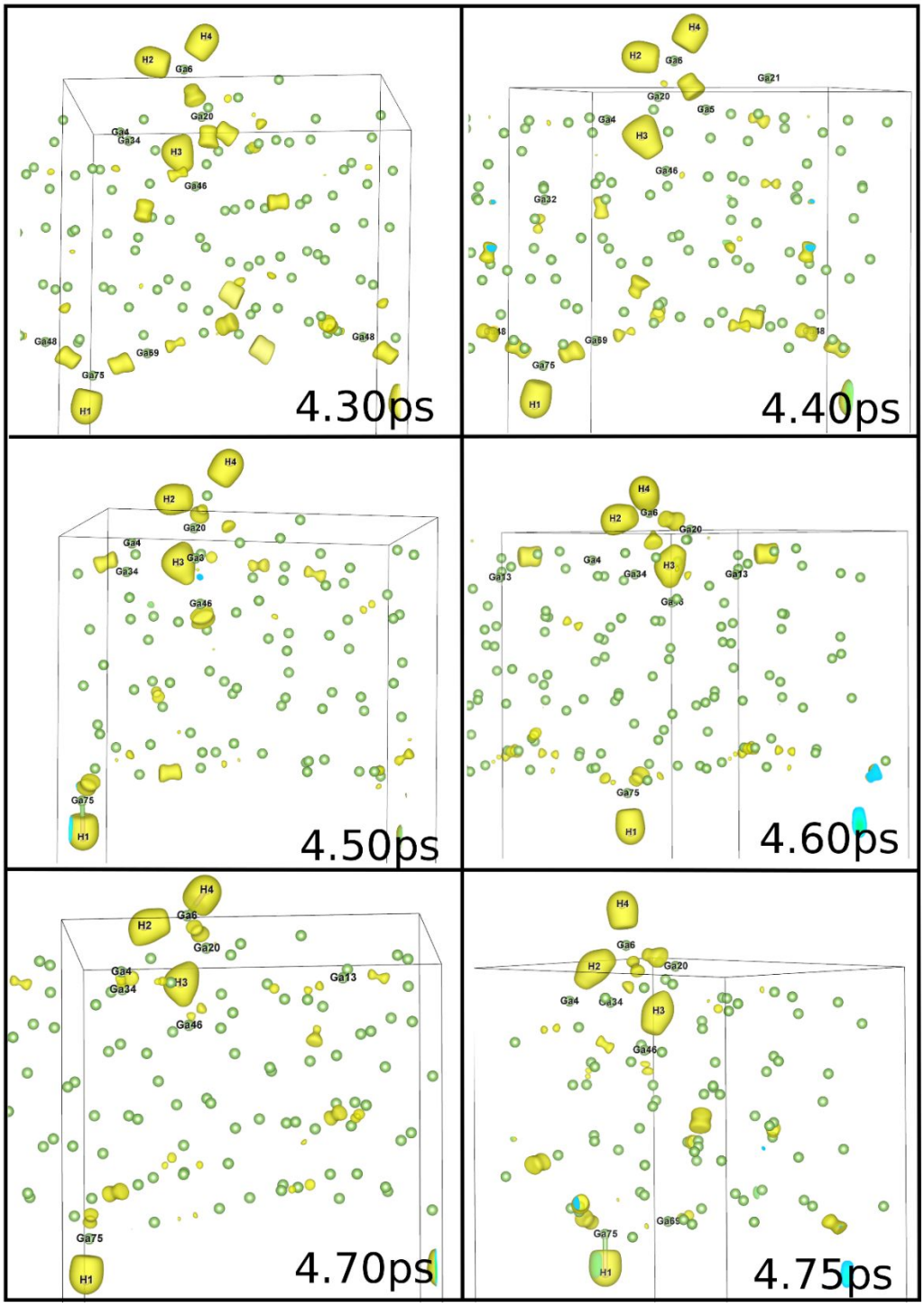

Figure S18. The trajectory from time 4300fs to 4742fs with electronic density isosurfaces of 0.042 e/Bohr^3. Bader charges for these frames are in **tables S10**, and **S11**.

Bader Charges

Bader charges were analyzed every 100 fs for the entire trajectory (**Tables S2 – 11**), and every 2 fs for detailed analysis of the H_2 dissociation process (110 – 198 fs, **Tables S12 – 21**). In addition to reporting the Bader charges, we have used a color scheme to represent molecular bonding and interactions occurring between H and Ga. A H atom and Ga atom are considered to form a molecular bond if there is no discontinuity in the electron density between the two atoms at 0.042e/Bohr^3.

In the following tables of Bader charges, colors are used to indicate a Ga-H bond, with these color for the 4 hydrogen atoms: Blue for H1, green for H2, fuchsia for H3, and yellow for H4. For example, if the cell background for Ga45 is blue, a bond exists at that time step between Ga45 and H1. When gallium forms a bond with more than one hydrogen, we represent this by additionally coloring the cell text (and the cell border if necessary (e.g., Ga6 at 1.00 ps is bonded to H2, H3, and H4. **Table S2**).

For Ga atoms that are not forming a "molecular bond" but are charged due to a weak interaction with H, the cell background is colored orange and the charge is written in the color depending on which H atom it is interacting with, blue for H1, green for H2, fuchsia for H3, and yellow for H4.

Notice that at 100 fs there are no molecular bonds between Ga atoms and H1 or H2 but there is a small transfer of charge from 3 Ga atoms (Ga3, Ga6, and Ga20) to these two H atoms.

Bader charges could have errors since they are very sensitive to the pseudopotentials used. The Bader analysis assumes that the charge density maxima is located at the atomic centers. The VASP pseudo potentials consider only valance electrons, (for gallium $4s^2$ $4d^1$ are considered as the valance electrons). Then the core charge has been added from the Projector Augmented Wave method

Time(fs)	100	200	300	400	500	600	700	800	900	1000
Ga1	0.05	-0.04	0.15	0.04	0.02	0.12	-0.02	0.01	0.04	0.02
Ga2	0.00	0.03	0.25	0.01	0.00	-0.01	0.01	0.06	0.03	-0.02
Ga3	0.11	0.02	-0.01	0.06	-0.05	0.07	0.02	0.05	0.10	0.09
Ga4	-0.04	0.51	0.25	0.38	0.05	0.37	0.28	0.41	0.37	0.14
Ga5	-0.05	0.05	0.02	0.03	0.06	-0.01	0.04	0.08	0.03	0.17
Ga6	0.33	0.39	0.22	0.06	0.37	0.34	0.65	0.71	0.78	1.04
Ga7	-0.05	0.03	0.24	-0.01	0.11	0.11	-0.05	0.02	-0.03	-0.07
Ga8	-0.05	0.00	0.04	0.03	-0.04	0.01	0.01	-0.01	-0.01	0.03
Ga9	0.00	-0.02	-0.04	-0.04	-0.04	-0.03	-0.02	0.01	-0.03	-0.04
Ga10	-0.02	0.00	-0.01	-0.02	0.03	-0.06	-0.03	-0.03	0.02	-0.06
Ga11	0.01	-0.06	-0.02	0.22	-0.03	0.03	-0.02	0.00	0.03	-0.03
Ga12	0.42	0.24	0.29	0.35	0.02	0.00	-0.07	-0.06	-0.07	-0.05
Ga13	-0.08	-0.02	0.01	-0.01	-0.01	-0.05	-0.02	-0.15	-0.05	0.02
Ga14	0.04	0.05	0.03	-0.03	-0.07	-0.01	0.04	0.03	0.06	0.08
Ga15	-0.01	0.03	-0.03	0.01	0.00	0.00	0.04	0.00	0.04	0.01
Ga16	-0.05	0.01	-0.08	-0.03	-0.03	-0.01	-0.03	0.00	0.04	-0.09
Ga17	0.07	0.01	0.04	-0.05	0.00	-0.01	0.00	-0.04	0.11	0.01
Ga18	0.01	0.00	-0.01	0.06	-0.02	0.02	0.09	0.25	0.24	0.24
Ga19	-0.04	0.04	0.05	-0.01	0.01	0.00	-0.01	0.04	0.27	0.02
Ga20	0.17	0.28	0.40	0.08	0.38	0.24	0.05	0.27	0.02	0.00
Ga21	0.09	0.01	0.04	0.03	-0.02	0.01	0.03	0.00	-0.01	0.02
Ga22	-0.01	0.02	0.04	0.00	0.07	0.04	0.02	0.01	-0.10	0.06
Ga23	0.04	-0.02	0.06	0.02	0.02	0.01	0.01	0.05	0.02	0.04
Ga24	-0.03	0.02	0.00	0.16	0.09	0.01	-0.02	0.02	0.03	0.01
Ga25	0.00	0.00	-0.01	0.01	0.01	0.00	0.08	0.02	0.00	0.00
Ga26	-0.02	0.01	-0.04	-0.03	0.05	0.05	-0.02	0.02	0.03	-0.06
Ga27	0.08	0.04	0.03	0.04	0.09	0.04	0.03	0.09	0.04	0.06
Ga28	0.40	0.25	0.26	0.35	0.22	0.21	0.29	0.04	0.03	0.09
Ga29	0.10	0.43	0.08	0.10	0.06	0.10	0.16	0.04	0.17	0.31
Ga30	0.01	0.01	0.01	0.01	0.04	0.03	0.03	0.04	0.02	0.01
Ga31	0.03	0.04	0.03	-0.04	0.02	0.05	0.01	0.04	0.13	0.06
Ga32	-0.03	0.30	0.05	0.15	0.11	0.07	0.05	0.03	0.00	0.01
Ga33	0.10	0.01	0.08	-0.02	0.06	-0.01	-0.02	-0.09	-0.05	-0.08
Ga34	-0.04	0.14	0.13	0.03	0.03	0.01	0.10	0.25	0.33	0.23
Ga35	0.00	0.04	0.03	0.01	0.03	-0.01	0.12	0.22	0.28	0.19
Ga36	0.10	0.02	0.32	0.17	0.34	0.24	0.17	0.16	0.10	0.02
Ga37	0.02	-0.01	0.01	0.05	-0.04	0.05	-0.01	0.01	0.05	0.01
Ga38	-0.03	0.01	0.03	-0.02	-0.02	-0.01	-0.02	0.02	-0.02	-0.01
Ga39	0.02	0.02	-0.03	0.05	0.00	0.01	-0.01	0.01	0.03	0.04
Ga40	0.04	0.01	0.00	0.02	0.03	0.01	-0.01	-0.01	-0.05	0.05
Ga41	0.02	0.08	0.03	0.06	0.37	0.06	-0.02	-0.01	-0.05	0.02
Ga42	-0.02	0.00	0.02	0.02	0.02	0.04	0.02	0.02	-0.01	0.02

Table S2. Bader charges of atoms Ga1 to Ga42 in the trajectory from 100 fs to 1 ps.

Time(fs)	100	200	300	400	500	600	700	800	900	1000
Ga43	-0.02	0.01	0.01	0.05	0.05	0.01	-0.02	-0.01	0.05	0.02
Ga44	0.03	0.05	-0.02	0.32	0.32	0.13	0.38	0.16	0.05	0.04
Ga45	-0.01	0.02	0.05	-0.02	-0.02	0.03	0.05	0.05	0.01	0.12
Ga46	0.43	0.32	0.17	0.42	0.42	0.51	0.58	0.34	0.37	0.30
Ga47	-0.02	0.02	0.01	-0.03	-0.03	0.03	0.03	0.05	0.04	0.03
Ga48	0.04	-0.02	-0.02	0.03	0.03	0.03	0.01	0.02	0.03	0.03
Ga49	0.07	0.10	0.00	0.02	0.02	0.00	0.01	-0.08	-0.04	-0.01
Ga50	0.02	0.00	0.00	0.03	0.03	-0.01	-0.01	0.01	-0.02	0.00
Ga51	0.01	-0.05	0.10	0.00	0.00	0.08	0.08	0.08	0.03	0.02
Ga52	-0.05	0.01	0.01	-0.01	-0.01	0.04	0.01	0.04	-0.02	-0.10
Ga53	0.00	0.06	-0.01	-0.04	-0.04	-0.02	-0.02	-0.07	-0.06	-0.01
Ga54	0.00	-0.03	0.00	-0.01	-0.01	-0.01	-0.04	-0.06	-0.06	-0.03
Ga55	-0.01	-0.08	0.04	0.01	0.01	-0.01	0.01	-0.02	0.03	-0.01
Ga56	0.01	-0.03	0.08	0.03	0.03	0.07	0.03	-0.02	0.03	-0.07
Ga57	0.01	-0.04	0.01	-0.01	-0.01	0.01	0.00	-0.01	-0.01	-0.01
Ga58	-0.06	-0.01	0.00	-0.04	-0.04	-0.03	-0.04	-0.03	0.03	0.03
Ga59	-0.05	-0.01	0.01	0.10	0.10	0.17	0.04	0.04	-0.01	-0.06
Ga60	0.12	0.02	0.12	0.44	0.44	0.26	0.29	0.02	0.00	-0.01
Ga61	0.17	0.35	0.22	0.34	0.34	0.22	0.10	0.00	0.07	0.12
Ga62	0.01	0.02	0.02	0.04	0.04	0.01	0.05	0.05	-0.02	-0.04
Ga63	0.02	-0.01	0.02	0.00	0.00	0.00	0.00	-0.03	0.03	0.04
Ga64	-0.03	0.06	-0.08	0.02	0.02	0.03	0.03	0.03	-0.03	0.03
Ga65	-0.04	-0.04	-0.01	0.00	0.00	-0.02	0.00	0.04	0.07	0.00
Ga66	0.01	-0.11	0.03	-0.04	-0.04	-0.07	-0.06	-0.02	0.03	0.02
Ga67	0.00	0.08	-0.08	0.02	0.02	0.00	-0.01	-0.03	0.02	0.04
Ga68	-0.11	-0.06	-0.05	-0.04	-0.04	-0.07	-0.01	0.01	-0.13	-0.03
Ga69	-0.03	0.02	0.03	0.03	0.03	-0.01	-0.01	0.08	0.19	0.44
Ga70	0.03	0.00	-0.08	0.01	0.01	0.36	0.27	0.15	0.07	0.04
Ga71	0.00	-0.09	-0.02	-0.08	-0.08	0.02	0.13	0.36	0.28	0.00
Ga72	0.01	-0.04	-0.02	-0.03	-0.03	-0.06	0.00	-0.07	-0.01	-0.03
Ga73	0.05	0.03	-0.04	0.04	0.04	0.03	0.07	0.01	0.03	0.05
Ga74	-0.05	0.00	0.51	-0.02	-0.02	0.00	-0.02	0.02	-0.04	-0.02
Ga75	0.00	-0.03	0.05	-0.04	-0.04	0.05	0.00	0.02	0.05	0.02
Ga76	-0.02	0.05	0.00	0.00	0.00	-0.02	-0.02	-0.07	-0.11	-0.05
Ga77	0.01	-0.02	0.00	0.00	0.00	0.01	-0.02	0.03	-0.02	-0.01
Ga78	0.04	-0.03	0.01	-0.01	-0.01	-0.03	0.01	0.05	0.06	0.04
Ga79	0.03	0.05	0.03	-0.02	-0.02	0.00	-0.03	-0.02	-0.03	-0.05
Ga80	-0.01	-0.01	0.00	0.03	0.03	-0.01	0.03	0.04	0.07	0.07
H1	-0.27	-0.85	-1.08	-0.95	-0.95	-0.99	-1.01	-0.97	-0.97	-0.76
H2	-0.33	-0.78	-0.93	-0.95	-0.95	-0.89	-0.92	-0.95	-1.05	-0.99
H3	-0.93	-0.91	-0.94	-0.93	-0.93	-0.94	-0.97	-0.92	-1.02	-1.01
H4	-0.77	-1.03	-1.08	-1.03	-1.03	-1.02	-0.97	-0.93	-0.95	-0.85

Table S3. Bader charges of atoms Ga43 to Ga80, H1, H2, H3, and H4 from 100 fs to 1 ps.

Time(fs)	1100	1200	1300	1400	1500	1600	1700	1800	1900	2000
Ga1	-0.03	0.00	-0.01	0.06	-0.05	-0.01	0.02	-0.01	0.02	-0.03
Ga2	-0.01	-0.01	0.03	0.00	-0.04	0.00	-0.03	0.01	0.06	0.07
Ga3	0.09	0.16	0.03	0.07	0.05	0.08	0.08	0.03	0.02	0.04
Ga4	0.10	0.10	0.05	0.12	0.27	0.32	0.40	0.39	0.47	0.50
Ga5	0.32	0.05	0.11	0.13	0.03	0.00	0.02	0.08	0.06	0.04
Ga6	0.72	1.10	1.03	0.83	0.95	0.86	0.88	0.80	0.75	0.74
Ga7	-0.06	-0.02	-0.02	-0.05	-0.04	-0.07	-0.08	-0.05	-0.02	0.01
Ga8	-0.05	-0.09	0.02	-0.07	-0.09	-0.05	-0.04	0.00	-0.04	-0.05
Ga9	-0.08	-0.04	-0.05	-0.01	-0.04	0.01	0.00	-0.02	0.02	0.05
Ga10	-0.01	-0.04	-0.04	-0.01	-0.10	0.02	0.02	-0.01	0.00	-0.02
Ga11	0.04	0.00	0.02	0.01	0.03	-0.03	0.03	0.02	0.03	-0.03
Ga12	-0.02	0.01	0.03	0.01	0.02	-0.02	0.00	-0.05	-0.02	-0.02
Ga13	0.01	-0.01	-0.04	-0.08	0.00	-0.08	-0.06	-0.04	-0.08	-0.07
Ga14	0.04	0.05	0.01	0.01	-0.01	0.02	0.01	-0.02	0.04	0.04
Ga15	0.03	0.02	0.04	0.04	0.07	0.05	0.09	0.06	0.01	-0.06
Ga16	0.00	-0.01	-0.04	-0.03	0.02	0.02	-0.01	-0.04	0.02	-0.03
Ga17	0.03	-0.01	0.03	-0.02	0.03	-0.09	-0.01	0.03	-0.01	0.08
Ga18	0.36	0.04	0.05	-0.02	0.09	-0.03	-0.04	0.10	0.04	0.02
Ga19	0.08	0.01	0.16	0.23	0.32	0.34	0.21	0.09	0.01	0.08
Ga20	0.08	0.06	0.13	0.24	0.29	0.23	0.15	0.15	0.08	0.00
Ga21	0.08	0.02	-0.03	0.00	0.00	0.00	0.04	-0.01	0.04	-0.08
Ga22	0.06	-0.02	0.07	0.02	0.05	-0.02	0.05	-0.02	-0.02	0.06
Ga23	-0.04	-0.01	-0.06	0.03	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.23
Ga24	-0.08	-0.02	0.01	-0.03	-0.05	0.06	0.08	-0.01	0.04	0.12
Ga25	-0.02	0.04	0.00	0.07	0.04	0.01	-0.08	-0.03	0.02	-0.08
Ga26	0.03	0.04	0.06	-0.01	0.08	0.01	0.03	0.02	0.00	0.04
Ga27	-0.02	0.01	0.03	0.04	0.05	-0.02	0.03	0.04	0.06	0.00
Ga28	0.00	0.05	0.05	0.05	-0.01	0.05	0.10	0.01	-0.03	0.02
Ga29	0.37	0.28	0.18	0.18	0.06	0.13	0.13	0.16	0.28	0.34
Ga30	0.04	0.01	0.03	-0.01	-0.01	0.02	0.02	0.02	-0.07	0.08
Ga31	0.04	0.06	0.01	0.03	0.04	0.06	-0.03	0.02	0.04	0.00
Ga32	-0.02	0.04	-0.06	0.01	0.01	0.07	0.00	-0.02	-0.01	-0.05
Ga33	0.03	0.01	0.08	0.19	0.23	0.14	-0.02	-0.04	-0.06	0.05
Ga34	0.24	0.40	0.58	0.40	0.16	0.29	0.31	0.39	0.38	0.42
Ga35	0.07	0.08	0.03	0.01	0.01	0.08	0.09	0.02	-0.01	-0.02
Ga36	-0.06	-0.04	-0.05	0.00	0.03	0.10	0.17	0.22	0.17	-0.02
Ga37	-0.01	0.04	0.00	0.00	0.03	0.00	-0.05	0.05	-0.05	0.01
Ga38	0.04	0.02	-0.02	0.00	-0.01	-0.02	-0.02	0.04	0.02	-0.02
Ga39	-0.03	0.01	0.02	0.04	0.06	0.05	0.03	0.04	-0.01	0.03
Ga40	-0.03	-0.01	-0.04	0.02	-0.04	0.02	0.03	0.01	-0.06	0.04
Ga41	0.00	0.02	0.03	0.02	-0.02	-0.05	-0.05	-0.04	0.00	0.00
Ga42	0.03	-0.06	-0.01	-0.07	-0.01	0.06	0.00	0.00	-0.02	0.04

Table S4. Bader charges of atoms Ga1 to Ga42 from 1.10ps to 2.00 ps.

Time(fs)	1100	1200	1300	1400	1500	1600	1700	1800	1900	2000
Ga43	0.02	0.00	-0.07	0.02	-0.01	0.00	0.01	-0.06	-0.05	0.01
Ga44	-0.01	-0.02	0.00	0.01	0.05	0.06	0.11	-0.01	0.03	0.02
Ga45	0.04	0.08	-0.02	0.03	0.01	0.00	-0.01	0.00	-0.02	-0.04
Ga46	0.39	0.25	0.36	0.29	0.35	0.33	0.22	0.46	0.54	0.38
Ga47	0.04	-0.07	0.06	0.06	-0.02	0.04	-0.03	0.04	-0.07	0.00
Ga48	0.01	-0.02	-0.04	0.04	0.12	0.02	-0.01	0.00	-0.01	-0.12
Ga49	0.04	0.09	0.03	0.00	0.00	0.00	-0.06	-0.04	0.01	0.04
Ga50	-0.04	0.02	0.05	0.08	0.04	0.06	0.07	0.05	0.05	0.03
Ga51	0.02	0.00	0.01	-0.03	-0.01	0.02	0.00	-0.01	0.03	0.00
Ga52	0.02	0.02	-0.05	0.00	0.04	-0.01	0.02	-0.02	-0.04	0.05
Ga53	-0.07	-0.01	-0.02	-0.01	-0.04	0.04	-0.01	-0.04	0.02	-0.02
Ga54	0.01	0.02	0.04	0.04	0.02	-0.03	-0.02	0.01	-0.02	0.02
Ga55	0.02	0.02	0.02	0.01	0.05	0.01	0.00	-0.08	0.05	0.00
Ga56	-0.02	0.06	0.05	0.03	0.01	0.02	0.02	0.01	0.06	0.03
Ga57	-0.02	0.00	-0.02	0.03	0.00	-0.01	0.01	-0.02	-0.02	0.02
Ga58	-0.03	-0.01	0.05	0.02	0.02	0.00	0.01	0.01	0.08	0.03
Ga59	0.02	0.02	-0.02	0.00	-0.02	-0.02	0.01	0.02	0.05	0.02
Ga60	-0.03	0.03	-0.08	-0.05	-0.04	-0.04	-0.04	-0.03	-0.05	0.01
Ga61	0.10	0.02	-0.01	0.06	0.04	0.05	0.00	0.01	0.06	0.01
Ga62	-0.04	0.01	0.03	-0.03	-0.02	-0.01	-0.03	-0.01	-0.05	-0.02
Ga63	0.00	0.11	-0.02	-0.03	-0.02	-0.04	-0.04	-0.01	0.03	0.00
Ga64	-0.01	0.03	0.01	0.04	0.02	-0.03	-0.04	0.03	-0.01	0.03
Ga65	-0.01	-0.05	-0.01	0.00	-0.04	0.00	-0.02	-0.02	-0.01	-0.02
Ga66	0.01	0.01	-0.03	-0.03	-0.02	-0.01	0.02	-0.02	-0.02	0.00
Ga67	0.01	0.03	-0.02	-0.03	-0.01	-0.01	-0.05	0.01	0.05	0.02
Ga68	-0.07	-0.05	0.01	-0.04	0.02	0.00	0.06	0.04	0.01	-0.05
Ga69	0.43	0.38	0.40	0.03	-0.02	0.05	-0.01	0.04	0.02	0.00
Ga70	0.02	-0.04	-0.03	0.00	-0.05	0.03	-0.01	0.01	0.09	0.04
Ga71	0.02	0.02	0.01	0.04	0.04	0.00	-0.01	-0.03	-0.03	0.02
Ga72	-0.03	-0.03	-0.05	0.01	-0.04	-0.06	-0.01	0.00	-0.03	-0.05
Ga73	0.04	0.00	0.06	0.00	-0.01	-0.01	0.06	0.04	0.02	-0.05
Ga74	-0.08	0.01	0.01	-0.06	-0.05	-0.08	0.00	0.04	0.08	0.00
Ga75	0.09	0.28	0.24	0.49	0.55	0.47	0.57	0.53	0.51	0.58
Ga76	-0.04	-0.01	-0.01	0.02	0.03	0.04	0.01	0.01	-0.01	0.01
Ga77	0.01	-0.04	0.00	-0.06	0.02	-0.03	0.03	0.03	-0.01	0.00
Ga78	0.22	0.08	0.08	0.03	0.05	0.02	0.03	0.02	-0.07	0.00
Ga79	-0.02	-0.07	-0.01	-0.01	-0.02	-0.01	-0.02	-0.02	-0.07	-0.02
Ga80	0.03	-0.07	-0.06	-0.03	0.00	-0.01	-0.01	-0.02	-0.04	-0.08
H1	-0.69	-0.78	-0.70	-0.63	-0.65	-0.66	-0.65	-0.63	-0.60	-0.58
H2	-0.93	-0.94	-0.95	-1.01	-1.06	-1.01	-0.96	-0.97	-0.91	-1.03
H3	-0.88	-0.95	-0.99	-0.98	-1.00	-1.03	-0.96	-0.97	-0.99	-1.04
H4	-0.93	-0.80	-0.78	-0.82	-0.88	-0.78	-0.77	-0.79	-0.82	-0.78

Table S5. Bader charges for atoms Ga43 to Ga80, H1, H2, H3, and H4, from 1.10 ps to 2.00 ps.

Time(fs)	2100	2200	2300	2400	2500	2600	2700	2800	2900	3000
Ga1	-0.10	0.00	0.06	-0.04	0.01	0.02	0.02	0.04	-0.01	0.05
Ga2	0.02	-0.03	-0.04	0.01	0.04	0.00	0.03	0.02	0.08	0.02
Ga3	0.02	0.07	-0.01	0.05	0.06	0.03	-0.01	0.01	0.03	-0.04
Ga4	0.73	0.60	0.61	0.74	0.80	0.83	0.75	0.69	0.73	0.71
Ga5	0.09	0.12	0.03	-0.03	0.07	0.05	0.09	0.02	0.07	0.02
Ga6	0.60	0.66	0.87	0.78	0.70	0.79	0.65	0.69	0.39	0.57
Ga7	0.03	-0.01	0.01	0.00	-0.01	-0.04	-0.03	-0.03	-0.04	-0.01
Ga8	-0.05	0.02	-0.04	0.01	-0.01	-0.03	-0.01	-0.03	0.06	0.00
Ga9	0.03	-0.02	0.00	-0.01	-0.05	-0.04	0.00	-0.03	-0.06	-0.02
Ga10	-0.04	-0.04	-0.05	0.00	0.02	0.05	0.02	0.02	0.00	-0.02
Ga11	0.00	-0.01	-0.02	-0.01	-0.04	-0.02	0.00	-0.04	-0.02	0.00
Ga12	-0.01	0.01	0.02	-0.02	0.00	-0.01	-0.06	-0.04	-0.03	-0.07
Ga13	-0.01	-0.02	-0.13	0.03	0.03	-0.01	-0.03	-0.03	0.01	-0.05
Ga14	-0.08	-0.03	0.08	0.07	-0.02	0.05	0.05	0.05	0.00	0.01
Ga15	-0.01	-0.05	0.01	0.03	-0.04	-0.01	0.02	0.02	0.00	-0.01
Ga16	-0.05	-0.01	-0.02	-0.04	-0.06	-0.02	0.04	-0.02	-0.01	0.03
Ga17	0.01	0.06	0.04	0.03	0.01	0.03	0.01	0.01	0.03	-0.01
Ga18	0.09	0.04	0.14	0.10	0.13	0.14	0.32	0.05	0.07	0.05
Ga19	-0.02	0.05	0.04	-0.03	0.00	0.00	0.04	0.03	-0.01	0.05
Ga20	0.02	0.09	0.10	0.09	0.15	0.13	0.16	0.25	0.44	0.37
Ga21	0.02	-0.08	0.02	0.07	-0.03	-0.04	-0.02	0.00	0.00	-0.02
Ga22	0.08	0.01	0.00	-0.04	-0.01	0.02	0.02	0.04	-0.03	0.05
Ga23	0.10	0.07	-0.03	-0.05	-0.02	-0.06	-0.06	0.00	0.03	0.04
Ga24	0.06	0.05	0.04	-0.02	0.00	0.03	0.04	0.00	-0.05	-0.05
Ga25	0.00	0.03	-0.05	0.03	0.00	-0.05	-0.03	-0.01	0.07	0.05
Ga26	0.04	0.00	0.05	0.07	0.07	0.04	0.04	0.02	-0.04	0.01
Ga27	-0.01	0.00	-0.01	-0.02	-0.05	0.02	0.05	0.03	0.06	0.07
Ga28	0.01	0.00	0.02	-0.02	-0.04	-0.01	-0.08	0.02	0.02	-0.03
Ga29	0.16	0.29	0.03	0.05	0.06	-0.02	0.12	0.07	-0.01	0.00
Ga30	0.06	0.05	0.03	-0.02	0.04	0.08	0.00	0.07	0.00	-0.02
Ga31	-0.01	0.01	-0.03	0.00	0.04	-0.01	-0.03	0.01	-0.04	0.08
Ga32	0.03	0.03	0.01	-0.05	-0.03	-0.03	0.00	0.03	0.02	-0.06
Ga33	-0.04	-0.03	-0.08	0.02	0.01	0.00	0.04	-0.01	-0.02	0.01
Ga34	0.43	0.41	0.35	0.37	0.31	0.43	0.37	0.39	0.45	0.47
Ga35	0.02	0.02	0.01	0.01	-0.05	0.03	0.04	0.02	0.04	-0.01
Ga36	0.00	0.03	0.04	0.00	0.04	-0.01	-0.03	0.00	-0.05	0.00
Ga37	0.06	0.07	-0.10	0.03	0.06	0.03	-0.01	0.03	-0.01	-0.01
Ga38	-0.01	0.02	0.05	0.00	-0.04	0.03	0.03	0.00	-0.02	0.00
Ga39	-0.03	0.01	0.11	-0.04	0.06	0.06	0.02	0.07	-0.01	0.06
Ga40	0.04	-0.01	0.00	0.01	-0.08	-0.01	-0.05	0.01	0.05	-0.03
Ga41	0.00	0.01	0.02	-0.01	0.00	-0.04	0.07	0.00	0.02	0.01
Ga42	0.00	-0.02	0.01	0.03	-0.02	-0.01	-0.03	-0.01	0.01	0.02

Table S6. Bader charges for atoms atoms Ga1 to Ga42, from 2.10 ps to 3.00 ps.

Time(fs)	2100	2200	2300	2400	2500	2600	2700	2800	2900	3000
Ga43	-0.02	0.02	0.05	-0.06	-0.03	0.01	-0.07	-0.04	0.02	-0.03
Ga44	-0.02	0.00	0.03	-0.05	0.03	0.01	0.01	0.04	0.03	0.04
Ga45	-0.06	-0.01	-0.01	-0.01	-0.07	-0.01	0.02	-0.03	-0.03	0.00
Ga46	0.40	0.41	0.46	0.46	0.39	0.30	0.24	0.21	0.39	0.33
Ga47	-0.03	0.04	0.03	0.01	0.08	0.01	-0.03	0.02	0.04	0.05
Ga48	-0.08	0.03	-0.01	0.00	0.02	0.01	-0.02	-0.06	-0.01	0.02
Ga49	0.09	-0.04	0.02	0.04	-0.01	0.02	0.05	0.05	-0.10	0.01
Ga50	0.04	0.00	0.04	0.03	0.01	0.04	-0.05	0.09	0.00	-0.01
Ga51	-0.05	-0.03	0.06	0.00	0.03	0.02	-0.01	0.01	0.05	0.06
Ga52	-0.01	0.02	-0.06	0.04	0.05	0.01	0.00	-0.05	-0.02	-0.02
Ga53	0.08	-0.02	0.01	0.01	0.05	0.03	0.02	0.05	-0.02	0.04
Ga54	0.06	-0.11	-0.01	-0.02	-0.01	-0.05	-0.01	0.02	0.01	-0.02
Ga55	0.02	0.01	0.03	0.06	0.01	0.03	0.00	0.02	-0.02	-0.05
Ga56	0.07	0.02	0.01	0.00	0.05	-0.02	0.04	0.02	0.03	0.00
Ga57	0.00	0.02	-0.03	0.00	-0.02	0.01	0.01	-0.01	0.01	-0.01
Ga58	0.04	0.04	0.00	-0.01	0.02	-0.02	0.03	-0.06	-0.04	0.03
Ga59	-0.02	0.00	-0.02	-0.04	-0.01	-0.04	-0.05	0.06	0.01	0.02
Ga60	0.02	0.00	0.05	0.01	-0.03	0.03	-0.05	-0.04	-0.03	0.04
Ga61	0.03	0.01	0.04	0.12	0.08	0.15	0.13	-0.05	0.05	0.00
Ga62	-0.04	-0.08	-0.02	-0.06	-0.03	0.02	-0.02	-0.02	0.03	0.01
Ga63	-0.01	-0.01	-0.01	-0.01	0.03	-0.02	-0.05	-0.02	-0.02	0.02
Ga64	0.02	0.01	0.04	0.01	-0.04	0.01	0.03	0.04	0.01	0.03
Ga65	-0.04	-0.01	-0.01	-0.02	-0.03	0.02	0.04	-0.01	-0.04	-0.05
Ga66	-0.01	-0.02	-0.06	-0.10	0.06	0.00	-0.02	-0.02	-0.02	-0.01
Ga67	-0.04	-0.01	-0.02	-0.01	-0.01	-0.03	0.00	-0.02	-0.01	-0.01
Ga68	0.01	-0.02	-0.03	0.04	0.02	-0.02	0.02	-0.08	-0.01	-0.01
Ga69	0.00	0.04	0.02	0.01	0.04	0.00	-0.03	-0.01	0.00	-0.05
Ga70	-0.01	0.09	0.06	0.08	0.03	0.03	0.09	0.08	0.01	0.01
Ga71	0.04	-0.01	0.01	0.01	0.01	-0.01	-0.04	-0.03	0.02	-0.03
Ga72	-0.01	-0.01	-0.02	0.03	-0.02	0.00	-0.04	0.01	-0.03	-0.03
Ga73	0.05	0.00	0.05	0.12	0.10	0.02	0.03	-0.03	0.04	-0.03
Ga74	0.01	-0.12	0.02	-0.03	0.01	0.04	-0.01	0.05	0.07	0.00
Ga75	0.53	0.52	0.48	0.57	0.51	0.53	0.60	0.48	0.54	0.56
Ga76	0.00	0.06	0.03	0.01	0.00	0.00	0.00	0.02	0.01	0.02
Ga77	-0.08	0.00	0.00	0.04	-0.03	0.02	0.05	0.01	-0.05	0.01
Ga78	0.00	0.02	-0.03	-0.03	-0.06	0.03	0.07	0.03	0.08	0.04
Ga79	0.00	-0.02	-0.05	-0.02	-0.04	-0.09	-0.02	-0.07	-0.04	-0.02
Ga80	-0.09	0.00	-0.03	-0.09	0.01	-0.05	-0.07	-0.02	0.01	-0.01
H1	-0.58	-0.60	-0.60	-0.64	-0.61	-0.61	-0.67	-0.60	-0.56	-0.60
H2	-0.93	-0.97	-0.92	-0.91	-0.94	-1.01	-0.95	-0.86	-0.93	-0.87
H3	-0.93	-0.97	-0.97	-0.98	-1.01	-1.00	-1.02	-0.95	-1.03	-1.04
H4	-0.72	-0.79	-0.80	-0.78	-0.78	-0.77	-0.82	-0.71	-0.67	-0.71

Table S7. Bader charges for atoms Ga43 to Ga80, H1, H2, H3, and H4, for trajectory at 2.10 ps to 3.00 ps.

Time(fs)	3100	3200	3300	3400	3500	3600	3700	3800	3900	4000
Ga1	0.06	0.03	0.01	0.06	0.01	0.07	-0.01	-0.10	0.02	-0.03
Ga2	0.01	0.03	0.01	0.02	-0.01	0.04	0.00	-0.02	0.06	0.04
Ga3	0.01	0.02	0.04	-0.01	0.05	0.12	0.00	0.05	0.11	0.00
Ga4	0.80	0.63	0.64	0.62	0.67	0.71	0.55	0.37	0.31	0.32
Ga5	0.04	0.02	0.00	-0.04	0.06	0.01	0.03	0.07	0.11	0.08
Ga6	0.45	0.49	0.55	0.65	0.54	0.61	0.60	0.77	0.86	1.05
Ga7	0.05	-0.01	0.03	-0.07	-0.01	0.01	0.02	0.03	-0.10	0.01
Ga8	-0.04	0.01	-0.02	0.00	-0.02	-0.05	-0.02	0.03	0.01	-0.01
Ga9	-0.04	-0.05	0.02	-0.02	-0.01	-0.04	-0.01	-0.01	-0.03	0.02
Ga10	0.04	0.02	-0.05	-0.02	0.01	-0.01	-0.03	-0.02	-0.05	-0.04
Ga11	0.01	-0.03	-0.01	-0.01	-0.03	-0.02	0.01	0.00	0.00	-0.14
Ga12	-0.06	-0.07	-0.03	-0.02	-0.02	-0.02	-0.04	0.00	-0.02	0.00
Ga13	-0.02	-0.05	0.01	-0.02	-0.02	-0.05	0.02	0.03	-0.01	0.03
Ga14	-0.05	0.06	-0.02	0.01	0.08	0.03	0.06	0.01	0.01	0.08
Ga15	-0.04	0.01	0.00	0.01	0.01	0.02	0.02	0.02	0.02	-0.01
Ga16	-0.02	-0.01	-0.06	-0.01	0.02	0.06	-0.01	-0.03	-0.03	0.03
Ga17	0.00	-0.02	-0.03	-0.03	-0.07	-0.05	0.04	0.12	0.06	-0.02
Ga18	0.07	0.05	0.15	0.09	0.00	0.00	-0.02	0.00	0.14	0.05
Ga19	0.01	0.05	0.03	0.04	0.01	-0.04	0.09	0.08	-0.02	-0.02
Ga20	0.39	0.31	0.39	0.28	0.27	0.29	0.30	0.24	0.41	0.33
Ga21	0.03	0.02	0.06	0.05	0.04	0.02	0.02	0.03	-0.02	-0.04
Ga22	0.02	-0.02	-0.07	0.05	0.02	0.00	0.04	0.05	0.02	0.07
Ga23	0.01	0.01	0.00	0.04	-0.01	0.00	-0.03	0.00	0.01	-0.01
Ga24	-0.02	0.02	0.00	0.05	0.02	-0.03	-0.03	-0.05	0.02	0.02
Ga25	-0.05	-0.05	0.04	0.01	-0.02	0.01	0.03	0.07	0.09	-0.03
Ga26	-0.01	0.02	-0.03	0.00	0.01	-0.08	-0.02	0.06	0.01	0.03
Ga27	0.04	0.01	-0.03	0.02	0.03	0.00	0.00	0.02	0.01	0.06
Ga28	0.00	-0.02	-0.02	-0.02	0.00	0.03	0.00	0.02	0.05	0.06
Ga29	0.05	-0.01	-0.01	0.00	0.08	0.04	-0.02	-0.02	-0.06	-0.02
Ga30	0.04	0.05	0.06	0.06	0.01	0.08	0.05	0.05	-0.01	0.10
Ga31	0.03	0.02	0.05	-0.03	0.04	0.01	0.06	0.03	0.03	0.03
Ga32	-0.01	-0.04	0.00	0.01	-0.02	0.00	-0.02	0.03	0.06	-0.01
Ga33	0.00	-0.01	0.01	0.01	0.03	-0.02	-0.04	-0.03	-0.02	0.00
Ga34	0.58	0.73	0.40	0.48	0.61	0.62	0.58	0.51	0.30	0.24
Ga35	0.02	0.00	-0.02	0.01	-0.02	-0.02	0.01	0.02	0.02	0.03
Ga36	0.07	0.03	0.06	0.07	0.12	0.11	0.06	0.02	0.03	0.12
Ga37	-0.03	0.04	0.07	0.03	-0.01	0.01	-0.04	0.00	-0.05	0.01
Ga38	-0.05	-0.02	-0.01	-0.01	0.01	-0.01	0.04	-0.02	0.00	-0.02
Ga39	0.02	0.02	0.03	0.02	0.07	0.08	0.09	0.00	-0.02	0.03
Ga40	0.07	0.01	0.04	0.02	-0.01	-0.02	-0.02	-0.01	0.03	0.00
Ga41	0.02	-0.02	0.00	-0.03	-0.01	0.01	-0.04	-0.04	0.00	-0.03
Ga42	-0.05	-0.02	-0.01	-0.03	0.03	-0.03	-0.02	0.00	-0.09	0.01

Table S8. Bader charges for atoms Ga1 to Ga42, from 3.10 ps to 4.00 ps.

Time(fs)	3100	3200	3300	3400	3500	3600	3700	3800	3900	4000
Ga43	0.01	0.01	0.01	0.00	0.00	0.00	-0.02	-0.01	0.00	-0.02
Ga44	0.09	0.02	0.01	0.02	0.10	0.02	0.00	-0.08	0.02	0.00
Ga45	-0.05	0.00	-0.06	-0.05	0.04	-0.01	0.03	-0.03	-0.01	-0.09
Ga46	0.28	0.32	0.37	0.27	0.22	0.27	0.37	0.19	0.21	0.17
Ga47	0.05	0.04	0.02	0.01	-0.01	0.03	-0.02	0.00	0.03	-0.07
Ga48	-0.01	0.11	0.05	0.04	-0.02	0.04	0.08	0.08	0.04	0.02
Ga49	0.04	-0.03	0.03	0.04	0.04	0.02	0.01	-0.02	-0.01	0.04
Ga50	-0.06	0.02	0.04	0.00	-0.02	0.03	0.01	-0.03	0.03	0.07
Ga51	-0.03	0.01	-0.04	0.00	0.02	-0.01	-0.02	0.02	-0.09	-0.04
Ga52	0.01	0.03	-0.02	0.00	-0.03	-0.01	-0.01	-0.03	-0.06	-0.03
Ga53	-0.05	0.01	0.01	0.04	0.05	0.01	-0.02	0.00	-0.01	0.03
Ga54	0.01	0.01	0.03	-0.01	0.01	-0.07	0.00	-0.01	0.02	0.02
Ga55	0.06	0.02	0.05	-0.01	0.03	-0.01	0.00	0.03	-0.02	0.02
Ga56	-0.01	-0.02	-0.03	-0.06	0.00	0.00	-0.01	0.02	0.06	-0.01
Ga57	0.02	0.02	0.00	0.01	-0.01	0.02	0.00	-0.02	-0.02	-0.03
Ga58	0.01	0.04	0.02	-0.03	0.01	0.00	0.01	0.04	0.08	-0.03
Ga59	-0.05	-0.01	0.00	0.02	-0.06	-0.08	-0.01	0.01	-0.01	0.01
Ga60	-0.03	-0.01	0.00	-0.04	0.00	-0.01	0.00	-0.08	0.04	0.02
Ga61	0.00	-0.03	-0.02	0.01	-0.06	0.03	0.00	0.00	-0.05	-0.03
Ga62	-0.02	0.01	0.02	0.01	0.01	-0.03	-0.01	0.00	-0.03	-0.06
Ga63	0.00	-0.01	0.02	-0.01	0.03	0.00	0.01	-0.04	-0.03	0.00
Ga64	0.04	-0.01	0.02	-0.01	0.00	0.01	0.02	0.01	0.00	-0.01
Ga65	-0.05	0.01	-0.09	0.01	0.00	-0.01	-0.02	-0.06	-0.06	-0.02
Ga66	0.00	-0.03	0.00	0.00	0.00	-0.02	0.00	-0.02	-0.03	-0.02
Ga67	-0.04	-0.02	-0.03	-0.03	0.00	0.00	0.03	-0.02	-0.02	0.00
Ga68	0.00	-0.02	-0.06	-0.02	-0.03	0.01	0.02	0.09	0.01	0.04
Ga69	0.03	-0.05	-0.03	0.03	-0.04	-0.01	-0.04	-0.04	-0.01	-0.04
Ga70	0.02	0.06	0.07	0.03	0.03	0.04	0.07	0.06	-0.02	0.05
Ga71	0.01	-0.01	-0.02	0.02	0.01	0.02	-0.04	-0.01	0.01	-0.04
Ga72	-0.02	0.01	0.01	0.03	0.00	-0.01	-0.06	-0.08	-0.04	0.04
Ga73	-0.01	0.07	0.08	0.02	-0.01	0.04	-0.01	0.04	0.06	0.03
Ga74	0.02	0.04	0.02	0.04	-0.01	0.04	0.07	0.03	0.02	0.09
Ga75	0.54	0.45	0.48	0.45	0.51	0.47	0.52	0.53	0.48	0.50
Ga76	0.02	-0.03	0.02	0.07	0.03	0.03	0.01	0.00	0.08	0.02
Ga77	-0.02	-0.05	-0.03	-0.04	-0.07	-0.01	0.03	-0.01	-0.03	0.01
Ga78	0.01	0.00	-0.06	0.05	0.05	0.03	-0.03	-0.01	0.04	-0.05
Ga79	0.05	-0.02	0.06	0.00	0.02	-0.04	-0.02	0.00	-0.01	-0.02
Ga80	0.03	-0.04	-0.05	0.00	-0.09	0.00	-0.01	0.02	0.06	-0.05
H1	-0.60	-0.61	-0.57	-0.60	-0.57	-0.60	-0.62	-0.58	-0.59	-0.60
H2	-0.95	-0.93	-0.92	-0.95	-0.97	-0.91	-0.86	-0.83	-0.84	-0.80
H3	-1.04	-0.99	-1.05	-0.99	-1.00	-1.07	-1.09	-1.01	-0.98	-1.01
H4	-0.75	-0.68	-0.67	-0.67	-0.78	-0.78	-0.66	-0.54	-0.59	-0.55

Table S9. Bader charges for atoms Ga43 to Ga80, H1, H2, H3, and H4, from 3.10 ps to 4.00 ps.

Time(fs)	4100	4200	4300	4400	4500	4600	4700	4742
Ga1	0.01	0.02	0.02	0.10	0.03	0.07	0.07	-0.02
Ga2	0.04	0.09	-0.03	0.00	0.01	-0.03	-0.03	-0.03
Ga3	0.01	0.05	0.06	0.03	0.12	0.04	0.04	0.04
Ga4	0.20	0.17	0.12	0.14	0.25	0.36	0.36	0.40
Ga5	0.05	0.01	0.05	0.04	0.03	-0.01	-0.01	0.01
Ga6	1.11	1.06	0.91	1.03	0.96	0.99	0.99	0.94
Ga7	-0.03	-0.01	0.01	0.01	0.02	0.03	0.03	0.00
Ga8	-0.02	0.00	0.01	-0.05	-0.06	0.01	0.01	-0.04
Ga9	-0.09	-0.04	-0.04	-0.02	-0.02	-0.01	-0.01	0.01
Ga10	-0.07	-0.02	-0.07	-0.07	-0.05	-0.01	-0.01	-0.03
Ga11	-0.02	-0.01	-0.01	-0.06	-0.03	-0.01	-0.01	0.04
Ga12	0.03	-0.06	-0.03	-0.03	0.02	-0.03	-0.03	-0.02
Ga13	0.02	-0.01	0.02	0.00	-0.03	0.10	0.10	0.00
Ga14	0.08	-0.01	0.02	0.05	0.05	-0.04	-0.04	0.02
Ga15	0.00	-0.03	-0.04	-0.05	-0.02	-0.02	-0.02	-0.07
Ga16	-0.01	-0.07	-0.04	-0.01	-0.01	-0.01	-0.01	0.01
Ga17	0.05	0.03	0.03	-0.01	-0.05	0.00	0.00	-0.02
Ga18	0.05	-0.03	-0.04	-0.02	-0.04	-0.03	-0.03	-0.01
Ga19	0.02	0.03	0.02	-0.08	0.01	0.02	0.02	0.09
Ga20	0.27	0.31	0.38	0.41	0.42	0.42	0.42	0.36
Ga21	0.06	0.09	0.17	0.17	0.06	0.06	0.06	0.06
Ga22	0.04	0.07	0.10	0.05	-0.02	0.06	0.06	0.02
Ga23	-0.01	0.01	-0.04	-0.04	0.01	0.02	0.02	-0.01
Ga24	0.00	-0.02	-0.02	0.01	0.03	0.04	0.04	0.05
Ga25	-0.01	0.04	0.00	-0.02	0.00	0.03	0.03	0.06
Ga26	-0.03	0.02	0.02	0.02	-0.01	0.02	0.02	0.03
Ga27	0.00	-0.05	0.02	0.02	0.00	0.01	0.01	0.03
Ga28	0.02	0.02	0.03	0.06	0.00	0.03	0.03	0.01
Ga29	-0.04	-0.04	0.03	-0.04	-0.05	-0.03	-0.03	0.05
Ga30	0.03	0.06	0.02	0.05	0.05	0.03	0.03	0.03
Ga31	0.05	0.01	0.06	-0.02	0.00	-0.02	-0.02	0.03
Ga32	0.02	-0.01	0.02	0.02	0.00	-0.02	-0.02	-0.02
Ga33	0.01	-0.05	-0.02	0.03	-0.04	-0.01	-0.01	0.01
Ga34	0.27	0.21	0.23	0.32	0.23	0.21	0.21	0.11
Ga35	0.00	0.05	0.04	0.00	-0.01	0.02	0.02	0.05
Ga36	0.07	0.09	0.01	-0.01	-0.01	-0.02	-0.02	0.01
Ga37	-0.04	-0.02	-0.07	-0.11	0.00	0.00	0.00	-0.03
Ga38	0.04	0.02	-0.04	0.03	-0.02	-0.07	-0.07	0.01
Ga39	0.02	0.01	0.02	0.02	0.06	0.03	0.03	0.05
Ga40	-0.01	0.00	0.00	0.01	-0.02	-0.04	-0.04	-0.04
Ga41	-0.07	-0.05	-0.07	0.01	-0.02	-0.01	-0.01	0.00
Ga42	-0.01	-0.01	0.00	0.01	0.01	0.02	0.02	0.02

Table S10. Bader charges for atoms Ga1 to Ga42, for trajectory from 4.10 ps to 4.74 ps.

Time(fs)	4100	4200	4300	4400	4500	4600	4700	4742
Ga43	0.00	-0.03	-0.05	0.03	-0.01	-0.03	-0.03	-0.02
Ga44	0.01	0.04	0.00	-0.05	0.02	-0.05	-0.05	-0.03
Ga45	-0.03	-0.02	-0.01	0.01	-0.05	-0.02	-0.02	0.00
Ga46	0.26	0.38	0.37	0.39	0.34	0.37	0.37	0.44
Ga47	-0.02	0.03	0.02	0.00	0.03	-0.04	-0.04	-0.02
Ga48	0.04	-0.01	0.01	0.02	0.00	0.02	0.02	0.05
Ga49	0.01	0.04	0.01	-0.05	0.05	0.05	0.05	0.01
Ga50	0.01	0.05	0.02	0.02	0.04	0.03	0.03	0.02
Ga51	-0.04	0.05	0.04	0.01	0.02	-0.02	-0.02	0.04
Ga52	-0.04	0.01	-0.02	-0.02	-0.01	-0.02	-0.02	-0.01
Ga53	0.00	-0.01	-0.05	0.02	-0.01	0.01	0.01	-0.01
Ga54	0.01	0.03	0.05	0.03	0.05	0.04	0.04	0.01
Ga55	0.02	0.00	0.01	-0.01	-0.03	0.04	0.04	0.04
Ga56	0.00	0.02	0.03	0.04	0.01	0.07	0.07	0.01
Ga57	0.01	-0.02	-0.03	0.04	-0.01	-0.07	-0.07	0.00
Ga58	0.07	-0.04	-0.03	0.05	0.03	0.03	0.03	0.01
Ga59	-0.01	0.03	-0.01	-0.01	0.07	-0.01	-0.01	0.00
Ga60	-0.02	-0.02	-0.03	-0.04	-0.02	0.00	0.00	-0.03
Ga61	-0.02	-0.10	-0.02	0.02	-0.01	0.00	0.00	0.01
Ga62	-0.06	-0.01	-0.04	-0.04	0.00	-0.04	-0.04	-0.01
Ga63	0.00	0.00	0.00	-0.02	0.00	0.02	0.02	0.03
Ga64	0.02	-0.07	0.04	-0.04	-0.02	0.01	0.01	-0.04
Ga65	-0.05	0.04	0.01	-0.03	-0.01	-0.05	-0.05	-0.05
Ga66	-0.02	-0.02	0.03	-0.01	-0.02	0.00	0.00	-0.04
Ga67	-0.04	0.00	0.03	0.00	0.02	-0.01	-0.01	-0.02
Ga68	-0.02	-0.05	0.03	0.02	0.04	-0.02	-0.02	-0.04
Ga69	0.03	-0.03	0.05	0.05	0.03	0.05	0.05	0.12
Ga70	0.11	0.03	-0.03	0.03	0.01	0.02	0.02	-0.04
Ga71	-0.03	-0.01	0.01	0.00	0.02	0.03	0.03	-0.02
Ga72	0.00	0.00	0.01	-0.01	-0.06	-0.03	-0.03	-0.02
Ga73	0.02	-0.01	-0.01	0.00	0.05	0.08	0.08	0.00
Ga74	0.03	0.05	-0.03	0.09	0.02	-0.01	-0.01	0.07
Ga75	0.48	0.56	0.55	0.44	0.56	0.49	0.49	0.50
Ga76	0.04	0.02	0.06	-0.02	0.01	0.00	0.00	-0.02
Ga77	-0.05	0.00	0.04	0.03	-0.01	-0.08	-0.08	0.00
Ga78	0.01	-0.01	0.01	-0.02	0.00	0.02	0.02	0.05
Ga79	0.01	-0.04	-0.15	-0.02	-0.08	0.00	0.00	-0.09
Ga80	-0.01	-0.03	0.02	-0.02	0.00	-0.01	-0.01	-0.04
H1	-0.58	-0.57	-0.58	-0.56	-0.60	-0.57	-0.57	-0.61
H2	-0.61	-0.61	-0.58	-0.66	-0.73	-0.81	-0.81	-0.89
H3	-1.04	-1.04	-1.07	-1.09	-1.00	-1.07	-1.07	-1.01
H4	-0.62	-0.61	-0.59	-0.60	-0.60	-0.62	-0.62	-0.56

Table S11. Bader charges for atoms Ga43 to Ga80, H1, H2, H3, and H4, from 4.10 ps to 4.74 ps.

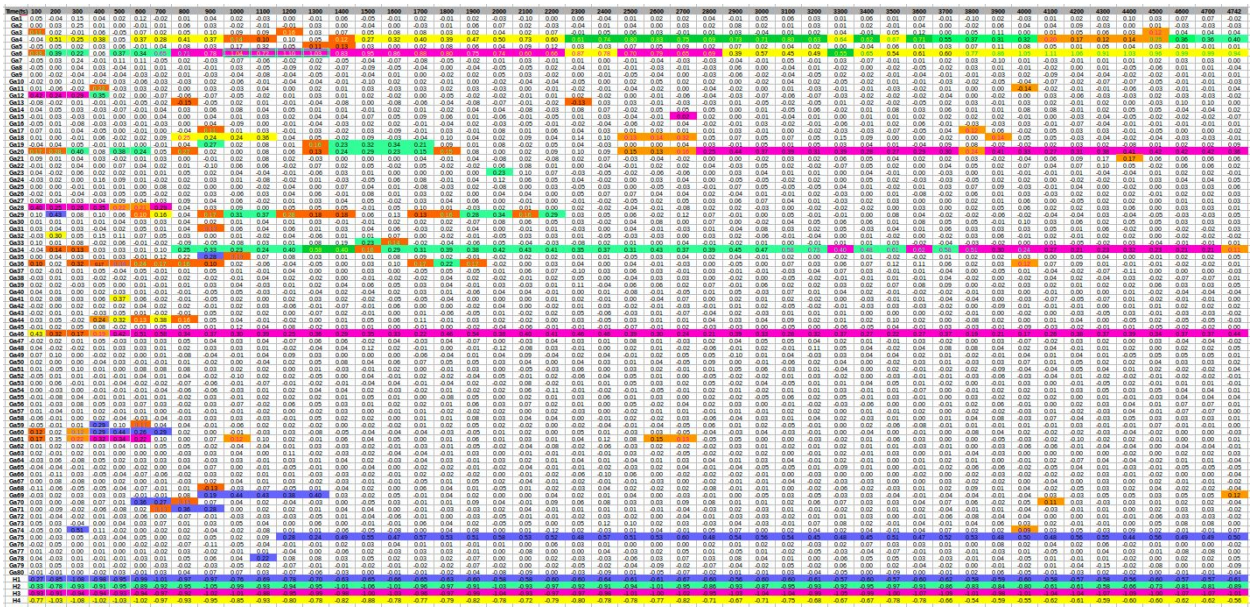

Figure S17. Bader charges of the entire sytem cluster during all the trajectory for visualising the bond breaking and formation with color. Details can be seen in figures S9 to S16.

Bader Charges every two fs for analysis of the process of dissociation of the H_2 molecule.

Time(fs)	110	112	114	116	118	120	122	124	126
Ga1	-0.01	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00
Ga2	-0.01	0.01	0.02	-0.03	-0.02	-0.02	0.00	0.01	-0.02
Ga3	0.00	-0.01	0.03	0.03	0.03	0.02	0.04	0.06	-0.03
Ga4	0.06	0.05	0.02	0.03	0.02	0.02	-0.01	-0.02	0.01
Ga5	0.03	0.01	-0.01	0.04	0.02	0.01	-0.03	-0.03	-0.01
Ga6	0.28	0.27	0.25	0.22	0.23	0.23	0.23	0.22	0.24
Ga7	-0.04	-0.04	-0.04	-0.02	-0.03	-0.03	-0.05	-0.04	-0.02
Ga8	-0.04	-0.03	-0.02	-0.02	-0.02	-0.03	-0.05	-0.05	-0.03
Ga9	0.02	0.03	0.02	0.01	0.00	-0.04	-0.05	-0.04	0.02
Ga10	-0.05	-0.05	-0.04	-0.07	-0.06	-0.06	-0.04	-0.06	-0.05
Ga11	0.00	0.01	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	-0.01	-0.03
Ga12	0.34	0.36	0.35	0.33	0.32	0.30	0.27	0.28	0.23
Ga13	-0.03	-0.05	-0.05	0.00	0.00	-0.01	-0.01	0.00	0.01
Ga14	0.02	0.04	0.05	0.03	0.03	0.04	0.05	0.06	-0.04
Ga15	0.01	0.00	0.00	0.00	-0.01	0.00	0.02	0.03	-0.01
Ga16	-0.08	-0.11	-0.10	-0.10	-0.08	-0.07	-0.04	-0.03	-0.07
Ga17	0.04	0.02	0.01	0.01	0.01	0.02	0.06	0.07	0.01
Ga18	0.01	0.02	0.02	0.01	0.00	-0.01	0.00	0.02	0.02
Ga19	0.02	0.01	-0.01	-0.05	-0.05	0.00	0.00	-0.02	0.05
Ga20	0.14	0.16	0.16	0.13	0.16	0.16	0.14	0.13	0.12
Ga21	0.08	0.07	0.07	0.08	0.08	0.08	0.05	0.03	0.03
Ga22	-0.03	-0.02	-0.02	0.00	-0.02	-0.01	0.00	-0.01	0.02
Ga23	0.03	0.03	0.02	0.00	0.02	0.05	0.02	-0.02	0.05
Ga24	0.02	0.00	-0.03	0.04	0.06	0.04	0.03	0.02	0.03
Ga25	-0.02	0.01	0.02	-0.01	-0.03	-0.03	0.00	0.02	-0.02
Ga26	0.02	0.02	0.02	0.00	0.01	0.01	-0.01	-0.01	0.04
Ga27	0.07	0.05	0.10	0.07	0.07	0.10	0.10	0.11	0.07
Ga28	0.46	0.45	0.46	0.45	0.43	0.44	0.39	0.32	0.36
Ga29	0.19	0.22	0.28	0.29	0.29	0.30	0.37	0.40	0.36
Ga30	0.00	0.02	-0.06	0.00	0.01	-0.01	-0.05	0.00	-0.01
Ga31	0.06	0.05	0.05	0.04	0.02	0.00	0.04	0.04	0.04
Ga32	0.01	-0.01	-0.02	-0.01	-0.01	-0.01	-0.01	0.00	0.00
Ga33	0.07	0.07	0.06	0.00	0.02	0.04	0.04	0.05	0.06
Ga34	-0.02	0.01	0.00	0.01	0.01	0.02	0.00	0.00	0.03
Ga35	0.02	0.05	0.04	0.05	0.05	0.04	0.01	-0.01	0.06
Ga36	0.12	0.14	0.14	0.12	0.10	0.08	0.04	0.03	0.07
Ga37	-0.04	-0.05	-0.03	-0.01	-0.02	-0.02	0.01	0.01	0.01
Ga38	0.01	0.00	0.00	0.02	0.02	0.00	-0.01	0.01	-0.02
Ga39	0.01	0.02	0.02	0.02	0.01	0.00	0.01	0.00	0.00
Ga40	0.04	0.04	0.03	0.03	0.03	0.02	0.02	0.02	0.03
Ga41	0.01	-0.01	-0.01	0.00	0.00	0.02	-0.01	-0.03	0.00
Ga42	0.00	0.02	0.03	0.04	0.05	0.06	0.07	0.11	0.14

Table S12. Bader charges for atoms Ga1 to Ga42 in the trajectory from 110 fs to 126 fs.

Time(fs)	110	112	114	116	118	120	122	124	126
Ga43	-0.03	-0.03	-0.03	-0.04	-0.04	-0.02	-0.02	-0.04	-0.03
Ga44	-0.03	-0.09	-0.09	-0.01	-0.04	-0.04	-0.01	-0.02	-0.07
Ga45	-0.03	-0.02	0.00	-0.08	-0.02	0.00	0.00	-0.01	0.01
Ga46	0.47	0.49	0.48	0.45	0.45	0.44	0.47	0.47	0.48
Ga47	0.04	0.04	0.03	0.00	-0.06	-0.12	-0.04	0.00	0.00
Ga48	0.00	0.01	0.04	0.05	0.06	0.05	0.05	0.06	0.04
Ga49	0.02	0.01	0.01	0.05	0.01	-0.01	0.00	0.03	-0.02
Ga50	0.03	0.03	-0.01	-0.04	-0.01	0.02	0.00	-0.03	-0.02
Ga51	0.05	0.04	0.03	0.00	0.03	0.06	0.05	0.03	0.05
Ga52	-0.02	-0.04	-0.05	-0.03	0.00	-0.01	-0.02	0.00	-0.05
Ga53	-0.01	0.00	0.02	0.07	0.09	0.08	0.05	0.01	0.03
Ga54	0.00	0.01	0.01	-0.02	-0.02	-0.02	-0.03	-0.03	-0.03
Ga55	-0.05	-0.06	-0.01	-0.03	0.01	0.06	0.03	0.01	-0.02
Ga56	0.02	0.03	0.02	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.03
Ga57	-0.01	0.01	0.01	-0.05	-0.06	-0.05	-0.08	-0.08	-0.03
Ga58	-0.01	-0.02	0.00	0.00	-0.03	-0.01	-0.02	0.00	-0.02
Ga59	0.01	0.03	0.02	0.03	0.01	-0.01	0.00	0.01	-0.01
Ga60	0.09	0.07	0.02	0.03	0.02	0.04	0.06	0.03	0.00
Ga61	0.18	0.18	0.18	0.20	0.22	0.25	0.25	0.30	0.33
Ga62	0.01	0.02	0.05	0.03	0.04	0.05	0.05	0.04	0.03
Ga63	0.02	0.02	0.02	0.01	0.03	0.03	0.02	0.00	-0.01
Ga64	0.00	-0.02	-0.03	-0.02	-0.01	0.01	0.01	0.01	-0.01
Ga65	-0.05	-0.04	-0.04	-0.03	-0.04	-0.05	-0.05	-0.04	-0.05
Ga66	0.03	0.03	0.03	0.01	0.03	0.00	-0.02	-0.03	0.03
Ga67	-0.01	0.01	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03	0.06
Ga68	-0.11	-0.07	-0.04	0.01	0.00	-0.02	-0.01	-0.01	-0.02
Ga69	-0.04	-0.04	-0.03	-0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.03
Ga70	-0.02	-0.01	-0.01	-0.01	-0.01	0.02	0.02	0.00	-0.05
Ga71	-0.05	-0.04	-0.03	-0.06	-0.03	-0.03	-0.03	-0.08	-0.08
Ga72	0.02	0.04	0.01	0.01	0.00	0.01	0.03	0.04	-0.01
Ga73	0.01	-0.02	-0.03	-0.01	-0.01	0.00	0.02	-0.02	0.02
Ga74	0.00	-0.03	-0.01	0.03	0.05	0.06	0.04	0.03	-0.01
Ga75	0.05	0.04	0.00	0.00	0.01	0.01	-0.02	-0.01	0.00
Ga76	-0.03	-0.02	0.03	0.00	0.02	0.03	0.00	-0.01	0.00
Ga77	0.02	0.01	0.01	0.03	0.03	0.03	0.01	0.01	-0.01
Ga78	0.05	0.06	0.05	0.03	0.01	0.03	0.03	0.04	0.03
Ga79	0.06	0.05	0.02	0.04	0.00	-0.03	0.00	0.01	0.07
Ga80	-0.02	-0.01	0.00	-0.02	-0.03	-0.03	-0.01	0.00	0.00
H1	-0.31	-0.32	-0.30	-0.26	-0.29	-0.29	-0.28	-0.25	-0.29
H2	-0.34	-0.36	-0.33	-0.30	-0.35	-0.40	-0.35	-0.30	-0.34
H3	-0.91	-0.90	-0.90	-0.92	-0.91	-0.91	-0.88	-0.89	-0.87
H4	-0.93	-0.95	-0.98	-0.98	-0.97	-0.97	-1.00	-1.02	-0.99

Table S13. Bader charges for atoms Ga43 to Ga80, H1, H2, H3, and H4, in the trajectory from 110fs to 126fs in intervals of 2fs.

Time(fs)	128	130	132	134	136	138	140	142	144
Ga1	0.01	0.02	0.04	0.04	0.03	0.02	0.01	0.01	-0.01
Ga2	-0.01	-0.02	-0.04	-0.03	-0.02	-0.03	-0.02	-0.02	-0.01
Ga3	0.00	0.01	0.04	0.00	0.00	0.00	0.01	0.03	0.04
Ga4	-0.01	-0.01	0.00	0.03	0.06	0.07	0.08	0.10	0.10
Ga5	0.00	0.03	0.05	0.05	0.05	0.02	0.00	-0.04	-0.03
Ga6	0.25	0.23	0.20	0.21	0.23	0.25	0.25	0.25	0.27
Ga7	-0.02	-0.01	0.00	-0.02	-0.01	0.00	0.00	-0.02	-0.03
Ga8	-0.01	0.00	-0.03	-0.04	-0.06	-0.06	-0.06	-0.04	-0.01
Ga9	0.01	0.01	0.00	0.01	0.01	-0.02	-0.02	0.01	0.03
Ga10	-0.05	-0.03	-0.01	0.01	0.01	-0.02	-0.01	-0.02	-0.04
Ga11	-0.04	-0.03	-0.02	-0.04	-0.06	-0.06	-0.06	-0.06	-0.02
Ga12	0.23	0.24	0.19	0.19	0.23	0.24	0.24	0.22	0.19
Ga13	0.00	0.01	0.01	0.01	-0.04	-0.04	-0.03	-0.02	0.00
Ga14	0.01	0.03	0.06	0.08	0.06	0.03	0.01	0.02	0.03
Ga15	0.02	0.04	0.03	-0.01	0.00	0.01	0.02	0.03	0.03
Ga16	-0.06	-0.07	-0.08	-0.07	-0.06	-0.04	-0.02	-0.04	-0.09
Ga17	0.00	0.03	0.05	0.08	0.07	0.08	0.09	0.06	0.04
Ga18	0.02	0.03	0.03	0.01	-0.02	-0.03	-0.05	-0.06	-0.03
Ga19	0.05	0.02	-0.02	-0.01	0.00	0.00	-0.02	-0.01	0.00
Ga20	0.09	0.07	0.11	0.10	0.09	0.13	0.17	0.16	0.18
Ga21	0.03	0.05	0.03	0.02	0.02	0.05	0.07	0.07	0.07
Ga22	0.04	0.05	0.05	0.06	0.06	0.04	0.01	-0.01	-0.04
Ga23	0.07	0.07	0.05	0.03	0.03	0.02	0.02	0.02	0.01
Ga24	0.03	0.01	-0.02	-0.01	0.00	0.02	0.03	0.02	-0.01
Ga25	-0.02	-0.03	-0.02	-0.02	-0.01	-0.02	-0.04	-0.04	-0.01
Ga26	0.02	0.01	0.01	0.02	0.03	0.04	0.04	0.04	0.03
Ga27	0.07	0.09	0.10	0.08	0.06	0.07	0.06	0.07	0.09
Ga28	0.34	0.29	0.27	0.26	0.26	0.28	0.32	0.37	0.40
Ga29	0.36	0.30	0.29	0.32	0.34	0.31	0.29	0.32	0.27
Ga30	0.01	0.00	0.01	0.03	0.01	0.02	0.00	-0.02	-0.03
Ga31	0.04	-0.01	-0.01	0.05	0.07	0.05	0.04	0.06	0.09
Ga32	-0.01	-0.02	-0.03	-0.01	0.00	-0.01	0.00	0.01	0.01
Ga33	0.06	0.05	0.06	0.05	0.05	0.04	0.04	0.03	0.03
Ga34	0.05	0.02	-0.02	-0.02	-0.01	0.03	0.04	0.08	0.12
Ga35	0.05	0.07	0.05	0.03	0.03	0.04	0.05	0.03	0.03
Ga36	0.05	0.01	0.02	0.01	-0.02	-0.03	-0.04	-0.02	0.00
Ga37	0.01	-0.01	0.00	-0.02	-0.03	-0.04	-0.07	-0.10	-0.08
Ga38	-0.01	0.01	0.00	-0.01	-0.02	-0.02	-0.02	-0.07	-0.08
Ga39	0.00	0.01	0.03	0.03	0.04	0.04	0.03	0.06	0.05
Ga40	0.01	-0.01	-0.05	-0.07	-0.03	0.01	0.03	0.05	0.05
Ga41	0.00	0.02	0.01	0.00	0.04	0.03	0.00	-0.02	-0.02
Ga42	0.15	0.14	0.12	0.09	0.08	0.10	0.08	0.04	0.02

Table S14. Bader charges of atoms Ga1 to Ga42 in the trajectory from 128 fs to 144 fs.

Time(fs)	128	130	132	134	136	138	140	142	144
Ga43	-0.01	-0.01	-0.01	-0.01	0.03	0.02	-0.01	-0.05	-0.05
Ga44	-0.07	-0.04	-0.02	-0.01	0.00	0.00	0.00	-0.02	-0.04
Ga45	0.02	0.01	0.00	-0.02	-0.02	-0.03	-0.01	0.01	0.02
Ga46	0.51	0.52	0.51	0.52	0.53	0.51	0.48	0.45	0.44
Ga47	-0.03	-0.04	0.01	0.02	0.01	0.00	-0.02	-0.02	-0.02
Ga48	0.02	0.01	0.05	0.09	0.06	0.03	0.02	0.01	0.01
Ga49	0.02	0.05	0.04	0.05	0.01	0.02	0.02	0.05	0.04
Ga50	-0.02	-0.01	-0.08	-0.09	0.01	0.00	0.02	0.02	0.02
Ga51	0.02	-0.01	0.02	0.04	0.04	0.05	0.06	0.05	0.05
Ga52	-0.09	-0.11	-0.05	-0.01	-0.01	-0.04	-0.05	-0.05	-0.03
Ga53	0.05	0.04	0.02	0.02	0.03	0.03	0.05	0.05	0.07
Ga54	-0.04	-0.06	-0.06	-0.03	-0.02	0.00	0.01	0.01	0.01
Ga55	-0.02	-0.01	0.01	0.02	0.04	0.02	0.02	0.02	-0.01
Ga56	0.06	0.05	0.02	0.01	-0.02	-0.02	-0.02	-0.02	-0.02
Ga57	-0.03	-0.02	-0.01	0.00	-0.01	-0.01	-0.01	-0.01	-0.02
Ga58	-0.03	0.01	0.06	-0.01	-0.04	-0.01	-0.02	-0.04	-0.06
Ga59	-0.02	-0.02	-0.01	-0.01	-0.07	-0.06	-0.01	0.01	0.01
Ga60	0.02	0.01	0.01	0.01	0.03	0.02	0.02	-0.01	-0.04
Ga61	0.38	0.37	0.37	0.36	0.35	0.30	0.24	0.27	0.29
Ga62	0.03	0.04	0.05	0.05	0.04	0.06	0.07	0.07	0.08
Ga63	-0.03	-0.02	-0.01	0.01	0.02	-0.01	-0.03	-0.04	-0.05
Ga64	0.01	0.02	0.05	0.03	-0.01	-0.01	-0.01	0.01	0.00
Ga65	-0.04	-0.06	-0.04	-0.01	-0.02	-0.04	-0.05	-0.02	0.00
Ga66	0.01	-0.03	-0.04	-0.02	0.02	0.03	0.02	0.01	0.00
Ga67	0.02	0.01	0.00	0.00	0.02	0.02	0.03	0.06	0.10
Ga68	-0.05	-0.04	-0.02	-0.02	-0.02	0.00	-0.02	-0.03	-0.04
Ga69	0.03	0.07	0.05	-0.01	-0.03	0.01	0.03	0.01	-0.04
Ga70	-0.03	0.00	0.02	0.00	0.00	0.01	0.02	0.01	0.00
Ga71	-0.06	-0.06	-0.13	-0.11	-0.05	-0.07	-0.07	-0.05	-0.05
Ga72	0.01	0.02	0.00	0.01	0.03	0.02	0.00	0.00	0.01
Ga73	0.02	0.00	-0.04	-0.01	0.01	0.02	0.02	0.03	0.03
Ga74	-0.03	-0.04	-0.02	-0.01	-0.02	-0.01	-0.02	-0.04	-0.06
Ga75	0.01	0.01	0.04	0.01	-0.01	-0.04	-0.04	0.00	0.00
Ga76	-0.02	-0.02	-0.03	0.00	0.01	0.02	0.02	0.02	0.02
Ga77	0.00	0.00	0.01	0.03	0.00	-0.01	-0.03	-0.02	-0.01
Ga78	0.03	0.04	0.03	0.03	0.01	0.00	-0.02	-0.03	-0.01
Ga79	0.06	0.04	0.01	-0.05	-0.03	0.00	0.04	0.02	0.01
Ga80	0.00	-0.01	-0.01	-0.03	-0.07	-0.06	-0.04	-0.01	0.01
H1	-0.30	-0.28	-0.26	-0.28	-0.30	-0.28	-0.29	-0.27	-0.29
H2	-0.39	-0.35	-0.29	-0.30	-0.33	-0.36	-0.31	-0.30	-0.37
H3	-0.87	-0.85	-0.88	-0.87	-0.85	-0.84	-0.84	-0.83	-0.83
H4	-0.99	-0.96	-0.95	-0.94	-0.92	-0.90	-0.88	-0.85	-0.82

Table S15. Bader charges for atoms Ga43 to Ga80, H1, H2, H3, and H4 in the trajectory from 128 fs to 144 fs.

Time(fs)	146	148	150	152	154	156	158	160	162
Ga1	-0.01	-0.02	-0.01	0.00	0.01	0.01	0.03	0.03	0.03
Ga2	-0.01	-0.01	-0.02	0.00	0.02	0.02	0.03	0.05	0.05
Ga3	0.02	0.02	0.01	0.00	0.00	-0.02	0.00	0.06	0.07
Ga4	0.14	0.18	0.20	0.23	0.23	0.25	0.26	0.26	0.32
Ga5	0.03	0.06	0.05	0.04	0.03	0.03	0.03	0.03	0.07
Ga6	0.26	0.25	0.22	0.21	0.23	0.25	0.26	0.23	0.21
Ga7	-0.02	-0.02	-0.01	-0.03	-0.03	-0.01	-0.01	-0.02	-0.02
Ga8	-0.01	-0.02	-0.03	-0.03	-0.03	-0.05	-0.06	-0.06	-0.05
Ga9	0.04	0.02	0.02	0.03	0.03	0.02	0.00	-0.02	-0.01
Ga10	-0.02	-0.03	-0.03	-0.05	-0.03	-0.04	-0.03	-0.01	-0.02
Ga11	-0.02	-0.04	-0.05	-0.03	-0.03	-0.05	-0.08	-0.10	-0.08
Ga12	0.18	0.21	0.23	0.16	0.12	0.22	0.28	0.24	0.23
Ga13	0.01	0.01	0.01	0.04	0.01	-0.04	-0.04	-0.04	-0.07
Ga14	0.03	0.04	0.05	0.02	0.04	0.04	0.03	0.03	0.05
Ga15	0.01	0.01	0.03	0.01	0.03	0.04	0.04	0.02	0.02
Ga16	-0.11	-0.13	-0.10	-0.11	-0.08	-0.02	0.00	0.00	0.01
Ga17	0.02	-0.04	-0.05	0.00	0.03	0.08	0.07	0.10	0.08
Ga18	0.00	0.01	0.03	0.02	0.01	0.01	0.00	-0.02	-0.02
Ga19	0.01	0.02	0.02	0.00	0.00	0.00	-0.01	-0.03	-0.04
Ga20	0.19	0.14	0.13	0.17	0.21	0.25	0.22	0.24	0.26
Ga21	0.05	0.03	0.06	0.05	0.00	0.00	0.01	0.00	-0.04
Ga22	-0.01	0.03	0.03	0.02	0.03	0.04	0.04	0.00	-0.02
Ga23	0.03	0.06	0.07	0.05	0.02	0.00	0.00	0.00	-0.01
Ga24	-0.03	-0.11	-0.11	-0.03	-0.01	-0.02	0.00	0.02	0.00
Ga25	-0.02	-0.02	-0.07	-0.09	-0.06	-0.04	-0.02	-0.03	-0.02
Ga26	0.03	0.04	0.06	0.05	0.02	0.02	-0.02	-0.05	-0.04
Ga27	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	0.11	0.10	0.10	0.08
Ga28	0.44	0.43	0.44	0.52	0.47	0.34	0.33	0.37	0.38
Ga29	0.26	0.26	0.25	0.25	0.25	0.21	0.21	0.19	0.21
Ga30	-0.01	-0.02	-0.04	-0.04	-0.04	-0.04	-0.03	-0.03	0.00
Ga31	0.08	0.08	0.09	0.07	0.06	0.03	0.01	0.03	0.04
Ga32	0.02	0.01	-0.01	-0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00
Ga33	0.06	0.07	0.06	0.06	0.09	0.09	0.06	0.04	0.04
Ga34	0.11	0.11	0.11	0.11	0.12	0.14	0.18	0.22	0.29
Ga35	0.03	0.01	-0.01	0.00	0.02	0.05	0.06	0.07	0.05
Ga36	-0.01	0.00	-0.06	-0.07	-0.04	0.02	0.02	0.01	0.01
Ga37	-0.07	-0.06	-0.04	-0.01	-0.01	-0.01	-0.01	-0.01	-0.01
Ga38	-0.05	-0.01	0.02	0.03	0.01	0.01	0.00	0.00	-0.01
Ga39	0.05	0.06	0.03	0.04	0.05	0.03	0.03	0.03	0.04
Ga40	0.04	0.06	0.05	0.03	0.00	-0.01	0.00	0.02	0.03
Ga41	-0.01	0.00	0.03	0.04	0.01	-0.02	-0.03	-0.03	0.00
Ga42	0.04	0.05	0.03	0.01	0.00	-0.01	-0.03	-0.03	-0.01

Table S16. Bader charges for atoms atoms Ga1 to Ga42 in the trajectory from 146fs to 162fs.

Time(fs)	146	148	150	152	154	156	158	160	162
Ga43	-0.06	-0.04	-0.02	0.03	0.02	-0.01	0.00	-0.01	-0.03
Ga44	-0.08	-0.09	-0.07	-0.04	-0.03	0.00	-0.01	-0.04	-0.05
Ga45	0.00	0.02	0.03	0.03	0.02	0.02	0.00	-0.02	-0.03
Ga46	0.41	0.37	0.34	0.36	0.35	0.35	0.32	0.29	0.29
Ga47	0.03	0.03	0.00	0.00	-0.04	-0.01	0.00	0.00	0.00
Ga48	0.04	0.06	0.04	0.05	0.00	0.04	0.05	0.01	-0.02
Ga49	0.07	0.00	0.00	0.02	0.02	0.03	0.03	0.02	0.03
Ga50	-0.04	-0.01	-0.03	-0.17	-0.03	-0.03	-0.02	0.01	-0.01
Ga51	0.07	0.09	0.04	0.01	0.05	0.04	0.03	0.02	0.03
Ga52	-0.05	-0.05	-0.02	-0.02	0.00	0.00	0.00	-0.01	-0.01
Ga53	0.06	0.05	0.06	0.09	0.07	0.06	0.03	0.01	-0.02
Ga54	0.02	0.01	-0.01	-0.02	-0.04	-0.06	-0.03	0.00	0.00
Ga55	-0.06	-0.05	-0.01	0.00	0.00	0.02	0.03	0.03	0.02
Ga56	-0.03	-0.05	-0.05	-0.04	-0.01	-0.01	-0.01	-0.02	-0.02
Ga57	-0.01	0.02	0.02	0.00	0.00	-0.03	-0.04	-0.03	0.01
Ga58	-0.05	-0.04	0.00	0.03	-0.01	-0.06	-0.02	0.01	-0.02
Ga59	0.03	0.02	0.03	0.03	0.01	0.02	0.03	0.02	0.00
Ga60	-0.05	-0.04	0.00	0.01	0.03	0.02	-0.01	-0.04	-0.05
Ga61	0.26	0.23	0.16	0.07	0.09	0.17	0.17	0.19	0.19
Ga62	0.09	0.07	0.05	0.03	0.03	0.02	0.04	0.06	0.08
Ga63	-0.03	-0.02	0.00	0.01	0.03	0.03	0.03	0.04	0.04
Ga64	-0.05	-0.07	-0.03	0.02	0.06	0.03	0.00	0.02	0.01
Ga65	-0.01	-0.03	-0.02	0.01	-0.01	-0.02	-0.02	0.01	0.00
Ga66	0.02	0.02	0.00	0.00	0.00	0.01	-0.01	-0.01	-0.02
Ga67	0.08	0.05	0.02	0.02	0.01	0.00	0.01	0.05	0.06
Ga68	0.00	0.01	0.01	0.01	0.00	-0.04	-0.02	-0.04	-0.04
Ga69	0.00	0.02	0.02	-0.06	-0.06	-0.01	0.02	-0.04	-0.01
Ga70	-0.04	-0.05	-0.01	0.03	0.04	0.05	0.02	0.04	0.02
Ga71	-0.08	-0.07	-0.07	-0.08	-0.06	-0.02	-0.06	-0.09	-0.10
Ga72	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.00	-0.01	-0.01	0.01
Ga73	0.01	0.03	0.02	-0.02	-0.03	-0.07	-0.03	0.01	0.04
Ga74	-0.05	-0.10	-0.08	-0.05	-0.03	-0.04	-0.02	-0.02	-0.03
Ga75	-0.02	-0.03	0.00	0.01	0.03	0.05	0.04	0.04	0.02
Ga76	0.00	0.02	0.03	0.03	0.02	0.01	-0.01	-0.01	0.01
Ga77	-0.03	-0.02	-0.04	-0.03	-0.05	-0.06	-0.07	-0.05	-0.02
Ga78	0.03	0.03	0.01	0.03	0.05	0.01	-0.01	0.00	0.01
Ga79	0.02	0.02	0.00	0.00	-0.04	-0.03	-0.01	0.01	0.01
Ga80	0.00	-0.02	0.01	0.03	0.01	0.01	0.00	-0.03	-0.04
H1	-0.32	-0.30	-0.23	-0.29	-0.31	-0.32	-0.32	-0.32	-0.34
H2	-0.40	-0.36	-0.33	-0.32	-0.37	-0.40	-0.34	-0.28	-0.36
H3	-0.85	-0.84	-0.86	-0.88	-0.87	-0.85	-0.85	-0.85	-0.85
H4	-0.81	-0.81	-0.80	-0.80	-0.80	-0.82	-0.85	-0.88	-0.92

Table S17. Bader charges for atoms Ga43 to Ga80, H1, H2, H3, and H4 in the trajectory from 146 fs to 162 fs.

Time(fs)	164	166	168	170	172	174	176	178	180
Ga1	0.02	-0.01	-0.01	0.00	0.02	0.01	-0.10	-0.06	-0.01
Ga2	0.04	0.06	0.06	0.06	0.03	0.05	0.04	0.04	0.04
Ga3	0.04	0.02	0.05	0.07	-0.01	-0.06	0.04	0.03	0.02
Ga4	0.34	0.34	0.34	0.37	0.35	0.36	0.39	0.37	0.34
Ga5	0.12	0.11	0.05	0.00	0.00	0.02	0.00	0.02	0.02
Ga6	0.22	0.22	0.22	0.22	0.24	0.24	0.26	0.22	0.24
Ga7	-0.01	-0.01	0.00	0.01	0.02	0.03	0.03	0.02	-0.01
Ga8	-0.04	-0.05	-0.07	-0.04	-0.06	-0.03	-0.04	-0.03	-0.04
Ga9	-0.01	-0.02	0.01	0.02	-0.04	-0.02	0.00	-0.02	-0.02
Ga10	-0.01	-0.01	-0.02	-0.03	0.00	-0.01	0.02	0.02	0.03
Ga11	-0.06	-0.04	-0.02	0.00	-0.09	-0.05	-0.03	-0.03	-0.03
Ga12	0.27	0.30	0.26	0.25	0.31	0.33	0.34	0.37	0.41
Ga13	-0.06	-0.03	0.00	0.02	0.04	0.04	0.06	0.04	0.06
Ga14	0.07	0.07	0.06	0.05	0.04	0.04	0.09	0.08	0.05
Ga15	0.02	-0.01	-0.01	-0.04	0.00	0.01	0.01	0.02	0.01
Ga16	0.00	-0.01	-0.01	-0.05	-0.04	-0.08	-0.07	-0.02	-0.02
Ga17	0.03	0.08	0.05	0.01	0.05	0.04	0.01	-0.01	0.02
Ga18	0.01	-0.01	-0.02	-0.03	0.01	0.02	0.01	-0.01	-0.03
Ga19	0.00	0.00	-0.02	-0.02	-0.01	0.02	0.05	0.06	0.02
Ga20	0.21	0.23	0.25	0.27	0.24	0.26	0.27	0.28	0.33
Ga21	-0.05	0.00	0.03	0.05	0.06	0.05	0.03	0.02	0.04
Ga22	0.02	0.01	-0.03	-0.05	0.02	0.01	0.02	0.06	0.03
Ga23	-0.03	-0.05	-0.01	0.02	0.00	0.00	-0.04	-0.03	-0.04
Ga24	0.00	0.00	-0.05	-0.06	-0.01	0.01	-0.05	-0.01	0.03
Ga25	0.01	0.01	0.00	-0.06	0.02	0.01	0.01	-0.01	-0.01
Ga26	-0.02	0.00	0.01	0.03	-0.04	-0.07	0.04	0.00	-0.04
Ga27	0.06	0.05	0.05	0.05	0.08	0.09	0.10	0.07	0.06
Ga28	0.31	0.30	0.33	0.37	0.33	0.33	0.35	0.37	0.36
Ga29	0.19	0.20	0.16	0.16	0.19	0.18	0.22	0.24	0.24
Ga30	0.03	0.03	0.01	0.02	-0.01	0.00	0.02	0.02	0.01
Ga31	0.04	0.07	0.08	0.07	0.04	0.04	-0.02	0.02	0.01
Ga32	-0.01	-0.02	-0.04	-0.02	0.02	0.03	-0.08	-0.05	-0.01
Ga33	0.07	0.07	0.06	0.06	0.11	0.11	0.10	0.08	0.08
Ga34	0.37	0.40	0.38	0.32	0.31	0.27	0.27	0.22	0.17
Ga35	0.05	0.05	0.04	0.01	0.04	0.03	0.01	0.03	0.04
Ga36	0.02	0.02	0.02	0.03	-0.01	0.00	0.03	0.06	0.05
Ga37	-0.02	-0.03	-0.01	0.01	-0.01	-0.02	-0.02	0.00	-0.02
Ga38	-0.03	-0.03	-0.01	0.04	-0.02	0.01	0.04	0.06	0.04
Ga39	0.04	0.02	0.01	0.02	0.01	0.02	0.03	0.02	0.03
Ga40	0.01	0.00	0.01	-0.01	0.02	0.04	-0.06	-0.06	-0.01
Ga41	0.00	0.03	0.04	0.04	0.03	0.05	0.06	0.05	0.09
Ga42	0.01	-0.02	-0.04	-0.05	-0.02	0.00	0.00	0.02	0.03

Table S18. Bader charges for atoms atoms Ga1 to Ga42 in the trajectory from 164 fs to 180 fs.

Time(fs)	164	166	168	170	172	174	176	178	180
Ga43	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	-0.03	0.01	0.01	0.01
Ga44	-0.03	-0.02	-0.01	0.01	-0.03	-0.04	0.01	0.02	0.00
Ga45	0.01	0.03	0.04	0.03	0.02	0.05	0.01	0.01	0.01
Ga46	0.28	0.24	0.20	0.20	0.25	0.32	0.36	0.39	0.45
Ga47	0.00	-0.01	0.03	0.02	-0.01	-0.01	0.01	0.03	0.02
Ga48	0.00	0.03	0.08	0.03	-0.01	-0.01	0.00	0.01	0.00
Ga49	0.04	0.02	0.00	0.00	-0.03	-0.02	0.03	0.04	0.04
Ga50	-0.05	-0.02	-0.04	-0.04	0.00	0.02	0.01	0.01	0.03
Ga51	0.03	0.02	-0.03	-0.04	0.03	0.05	0.00	0.00	0.04
Ga52	0.00	0.00	0.00	-0.01	0.01	-0.01	0.01	0.01	0.02
Ga53	-0.04	-0.02	0.01	0.02	0.02	0.04	0.03	0.03	0.03
Ga54	-0.02	-0.03	-0.02	0.00	-0.04	-0.05	-0.01	-0.03	-0.07
Ga55	0.01	0.01	0.00	0.01	0.05	0.03	0.03	0.03	0.01
Ga56	-0.01	-0.04	-0.02	0.00	-0.09	-0.14	-0.13	-0.08	-0.02
Ga57	0.02	0.00	0.00	-0.02	-0.03	-0.01	-0.03	-0.03	-0.04
Ga58	-0.03	0.01	0.01	0.04	0.01	-0.03	0.01	0.03	-0.01
Ga59	-0.03	-0.02	-0.01	-0.01	0.00	-0.02	0.00	0.01	0.01
Ga60	-0.04	-0.03	0.03	0.03	0.03	0.02	0.01	0.02	0.01
Ga61	0.19	0.18	0.14	0.14	0.20	0.17	0.19	0.21	0.21
Ga62	0.09	0.06	0.05	0.03	0.03	0.09	0.04	0.04	0.03
Ga63	0.02	0.00	-0.01	-0.02	0.01	-0.01	0.00	0.01	0.04
Ga64	0.04	0.03	0.04	0.01	-0.01	0.03	-0.02	-0.02	-0.03
Ga65	-0.02	-0.03	-0.04	-0.06	-0.06	-0.06	-0.05	-0.10	-0.12
Ga66	0.00	0.00	0.01	0.01	0.02	-0.01	0.01	0.03	0.04
Ga67	0.02	0.05	0.03	0.02	0.05	0.07	0.09	0.07	0.05
Ga68	-0.09	-0.10	-0.06	-0.06	-0.04	-0.04	-0.06	-0.05	-0.01
Ga69	0.02	0.01	-0.02	-0.01	-0.03	-0.04	-0.03	-0.03	0.00
Ga70	-0.02	-0.06	0.01	0.02	0.02	0.00	0.08	0.07	0.04
Ga71	-0.09	-0.10	-0.07	-0.06	-0.13	-0.10	-0.11	-0.11	-0.08
Ga72	0.02	0.01	0.02	-0.04	0.04	0.03	0.04	0.03	0.02
Ga73	0.04	0.02	-0.01	-0.04	0.00	0.01	0.01	-0.03	-0.01
Ga74	-0.01	-0.01	-0.06	-0.05	-0.01	-0.02	0.01	0.00	-0.03
Ga75	0.03	0.04	0.04	0.04	0.03	0.05	0.03	0.04	0.01
Ga76	-0.01	-0.02	-0.06	-0.02	0.02	0.02	0.03	0.01	0.02
Ga77	-0.02	0.01	0.02	0.01	-0.03	0.00	-0.04	-0.07	-0.08
Ga78	0.03	0.02	0.03	0.05	0.04	0.02	-0.03	0.00	0.02
Ga79	0.00	-0.01	-0.01	0.01	0.02	0.02	0.01	0.00	0.03
Ga80	-0.03	-0.01	0.01	0.03	0.02	0.00	-0.01	-0.03	-0.06
H1	-0.38	-0.38	-0.34	-0.34	-0.42	-0.51	-0.59	-0.64	-0.68
H2	-0.41	-0.41	-0.33	-0.29	-0.41	-0.47	-0.57	-0.62	-0.70
H3	-0.84	-0.84	-0.85	-0.88	-0.87	-0.90	-0.93	-0.96	-0.97
H4	-0.95	-0.97	-0.99	-0.99	-0.94	-0.93	-0.94	-0.92	-0.91

Table S19. Bader charges for atoms Ga43 to Ga80, H1, H2, H3, and H4 in the trajectory from 164 fs to 180 fs.

Time(fs)	182	184	186	188	190	192	194	196	198
Ga1	.01	0.01	-0.01	0.03	-0.01	-0.01	-0.01	-0.02	-0.03
Ga2	0.03	0.03	0.04	0.05	0.04	0.03	0.05	0.06	0.08
Ga3	0.04	-0.04	0.00	-0.03	-0.04	-0.11	-0.11	-0.06	-0.07
Ga4	0.32	0.31	0.32	0.33	0.35	0.41	0.47	0.49	0.52
Ga5	0.02	0.07	0.03	0.03	0.03	0.01	0.07	0.11	0.12
Ga6	0.26	0.23	0.29	0.29	0.32	0.31	0.32	0.36	0.36
Ga7	-0.02	0.06	0.04	0.01	0.03	0.04	0.04	0.03	0.03
Ga8	-0.04	-0.03	-0.04	-0.03	-0.04	-0.03	-0.02	0.00	0.00
Ga9	-0.04	-0.02	-0.04	-0.01	-0.04	-0.08	-0.09	-0.11	-0.13
Ga10	0.02	-0.03	-0.02	-0.01	-0.02	-0.02	-0.01	-0.01	-0.02
Ga11	-0.02	-0.08	0.03	-0.05	-0.04	0.03	0.00	-0.01	0.00
Ga12	0.41	0.45	0.34	0.36	0.30	0.28	0.26	0.26	0.25
Ga13	0.05	0.04	0.04	0.03	0.03	0.05	0.03	0.02	0.01
Ga14	0.02	0.07	-0.02	-0.01	0.04	0.04	0.03	0.04	0.06
Ga15	0.03	0.01	0.01	0.01	0.02	-0.01	0.00	0.02	0.01
Ga16	-0.01	-0.06	-0.05	-0.04	-0.01	-0.01	0.00	0.00	0.01
Ga17	0.07	0.05	-0.03	0.07	0.06	0.05	0.03	0.04	0.06
Ga18	-0.04	0.03	0.03	-0.01	0.00	0.01	0.02	0.02	0.02
Ga19	0.00	0.03	0.06	0.02	0.05	0.06	0.05	0.04	0.04
Ga20	0.41	0.38	0.43	0.48	0.45	0.43	0.39	0.36	0.34
Ga21	0.05	0.03	0.00	-0.01	0.00	0.03	-0.02	-0.07	-0.03
Ga22	-0.01	0.07	0.01	0.02	0.07	0.05	0.04	0.06	0.06
Ga23	-0.05	-0.01	0.02	-0.05	0.01	0.00	0.00	-0.02	-0.02
Ga24	0.04	0.03	0.01	0.06	-0.02	0.00	0.03	-0.02	-0.02
Ga25	0.00	0.01	0.02	0.05	-0.02	-0.05	-0.03	0.01	0.02
Ga26	-0.06	0.01	0.00	-0.07	0.04	0.03	0.01	0.00	0.02
Ga27	0.06	0.06	0.06	0.08	0.08	0.07	0.07	0.06	0.07
Ga28	0.34	0.28	0.32	0.31	0.32	0.32	0.29	0.29	0.27
Ga29	0.26	0.25	0.28	0.29	0.28	0.26	0.30	0.32	0.37
Ga30	0.01	0.03	0.02	0.01	-0.01	0.01	0.01	-0.02	0.00
Ga31	0.02	0.00	0.01	0.00	0.04	0.02	0.03	0.08	0.05
Ga32	0.03	0.08	0.09	0.08	0.10	0.16	0.20	0.22	0.26
Ga33	0.10	0.09	0.03	0.07	0.06	0.06	0.04	0.03	0.01
Ga34	0.15	0.16	0.14	0.08	0.10	0.11	0.13	0.14	0.14
Ga35	0.03	0.04	0.04	0.03	0.01	-0.01	-0.01	-0.02	-0.01
Ga36	0.03	-0.03	0.04	0.00	0.07	0.04	0.05	0.04	0.02
Ga37	-0.03	-0.03	-0.01	0.00	-0.04	0.01	0.00	-0.05	-0.07
Ga38	0.00	0.00	0.01	-0.01	0.04	0.03	0.02	0.00	-0.01
Ga39	0.05	0.00	0.02	0.02	-0.01	0.00	0.02	0.05	0.03
Ga40	0.04	-0.04	0.02	0.05	0.02	0.02	0.02	0.03	0.00
Ga41	0.09	0.06	0.06	0.11	0.12	0.13	0.12	0.11	0.11
Ga42	0.06	0.06	0.05	0.03	0.01	0.03	0.03	0.01	0.00

Table S20. Bader charges for atoms atoms Ga1 to Ga42 in the trajectory from 182 fs to 198 fs.

Time(fs)	182	184	186	188	190	192	194	196	198
Ga43	0.00	0.02	0.00	0.01	0.04	0.09	0.07	0.04	0.01
Ga44	0.01	0.03	-0.02	0.04	-0.01	-0.01	-0.02	-0.02	-0.03
Ga45	0.03	-0.03	-0.03	-0.06	-0.03	0.00	0.02	0.03	0.04
Ga46	0.50	0.58	0.57	0.54	0.49	0.44	0.38	0.35	0.34
Ga47	0.07	-0.02	-0.04	0.01	0.01	0.04	0.00	-0.02	-0.02
Ga48	0.03	-0.02	-0.03	0.03	0.02	0.03	0.04	0.01	0.02
Ga49	0.05	-0.01	0.04	0.01	0.02	0.03	0.04	0.07	0.07
Ga50	-0.03	0.04	0.01	-0.03	-0.03	-0.05	-0.01	0.01	-0.03
Ga51	0.02	0.02	-0.02	0.06	-0.04	0.01	0.02	0.01	0.01
Ga52	-0.03	-0.02	-0.06	-0.05	-0.05	-0.03	-0.01	-0.01	-0.02
Ga53	0.04	0.00	0.05	0.05	0.05	0.05	0.06	0.04	0.06
Ga54	-0.06	0.00	-0.02	0.02	-0.04	-0.01	0.00	0.00	-0.01
Ga55	-0.03	0.02	0.01	0.01	-0.03	-0.02	-0.02	-0.03	-0.02
Ga56	0.01	-0.02	0.03	-0.02	0.00	-0.01	-0.03	0.00	0.00
Ga57	-0.01	-0.02	-0.03	-0.02	0.01	0.02	0.00	-0.02	-0.03
Ga58	-0.03	0.01	-0.01	0.02	0.04	0.03	-0.01	-0.05	-0.04
Ga59	0.00	0.02	-0.02	0.03	-0.06	-0.06	-0.03	-0.02	0.01
Ga60	0.02	-0.01	-0.01	0.02	0.05	0.03	0.00	0.01	-0.01
Ga61	0.23	0.29	0.33	0.29	0.36	0.38	0.40	0.42	0.37
Ga62	0.03	-0.02	0.01	-0.01	0.00	-0.02	-0.09	-0.07	-0.01
Ga63	0.03	0.01	0.02	0.00	0.00	-0.01	-0.01	0.00	0.02
Ga64	0.00	-0.04	-0.01	-0.06	0.04	0.04	0.03	0.02	0.02
Ga65	-0.09	-0.03	-0.03	-0.03	-0.01	-0.01	0.02	0.02	-0.03
Ga66	0.04	0.02	0.00	0.05	-0.02	-0.04	-0.05	-0.03	-0.03
Ga67	0.02	0.01	0.02	0.00	0.07	0.07	0.07	0.05	0.03
Ga68	0.00	-0.01	-0.01	0.01	-0.03	-0.04	-0.03	-0.03	-0.07
Ga69	0.02	-0.02	0.02	0.03	0.01	0.04	0.04	0.01	0.03
Ga70	0.00	0.03	0.00	0.01	0.02	0.01	0.04	0.02	0.01
Ga71	-0.09	-0.10	-0.10	-0.07	-0.06	-0.10	-0.07	-0.05	-0.05
Ga72	0.00	0.01	0.00	-0.02	0.00	0.00	0.00	0.00	-0.03
Ga73	0.00	0.01	0.04	-0.02	0.01	0.00	-0.02	0.01	0.03
Ga74	-0.07	-0.02	-0.03	-0.05	-0.13	-0.10	-0.07	-0.05	-0.05
Ga75	0.04	0.05	0.00	-0.01	0.02	-0.01	-0.03	-0.04	-0.02
Ga76	-0.02	0.01	0.06	0.01	0.03	0.04	0.03	0.06	0.05
Ga77	-0.04	-0.01	-0.01	-0.01	0.02	0.01	0.02	0.02	0.01
Ga78	0.04	0.02	0.04	0.03	0.02	0.00	-0.04	-0.01	0.00
Ga79	0.03	0.02	0.01	0.01	-0.02	-0.03	-0.03	-0.01	0.01
Ga80	-0.06	0.00	0.03	-0.01	0.01	0.02	0.02	0.00	0.01
H1	-0.74	-0.76	-0.79	-0.80	-0.79	-0.79	-0.80	-0.82	-0.83
H2	-0.76	-0.79	-0.82	-0.84	-0.86	-0.85	-0.85	-0.84	-0.85
H3	-0.98	-1.01	-0.99	-1.00	-0.98	-1.00	-0.99	-0.97	-0.93
H4	-0.92	-0.91	-0.91	-0.92	-0.91	-0.94	-0.94	-0.97	-1.00

Table S21. Bader charges for atoms Ga43 to Ga80, H1, H2, H3, and H4 in the trajectory from 182 fs to 198 fs.

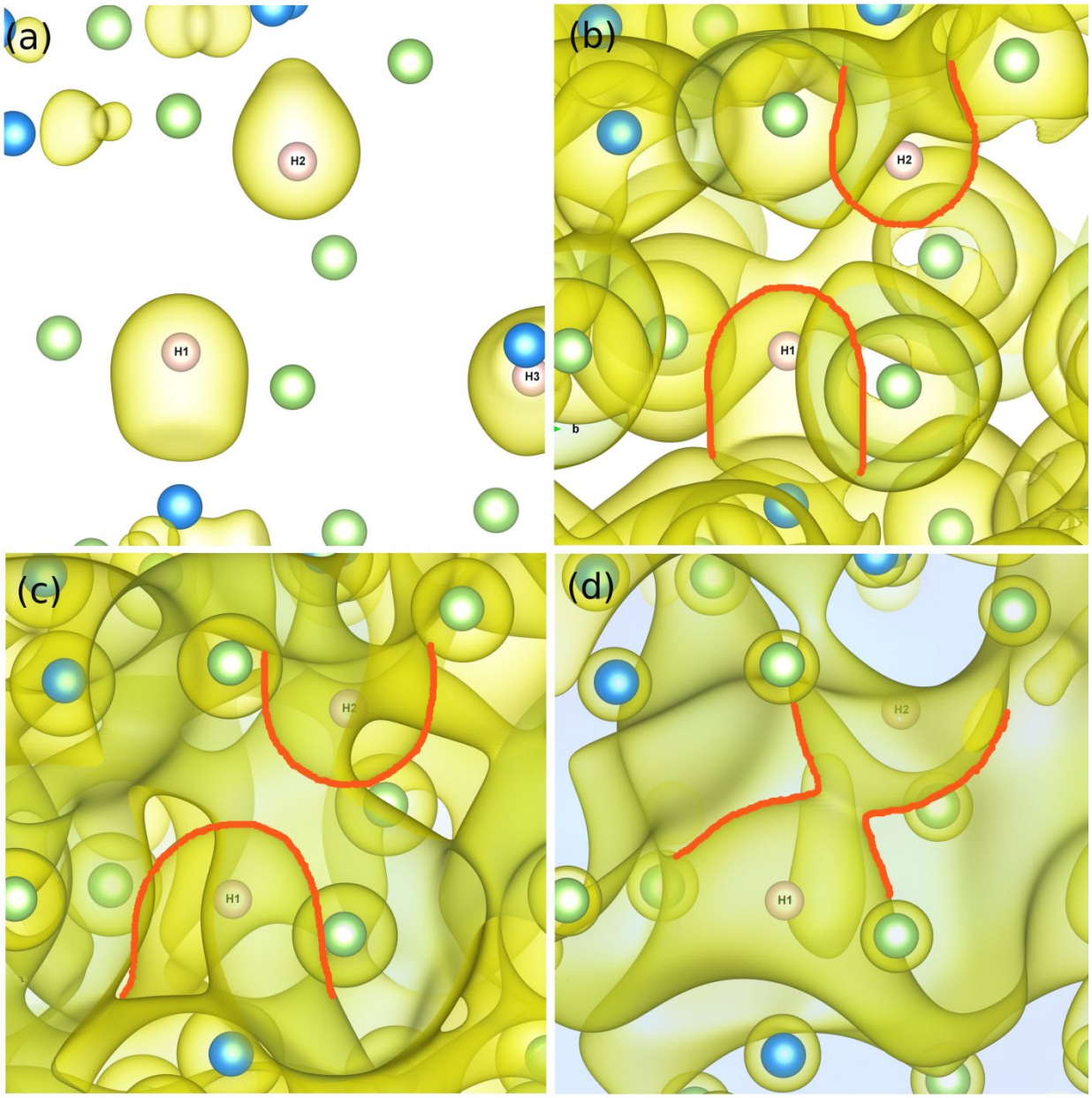

Figure S18 Electronic density isosurfaces of the region around the H_2 molecule (H1-H2) detailing the point of the separation in the electronic density (SED) of the bond which occurs at 182fs (see **Figure 6**a-c in the main text) **(a)** 0.042 e/Bohr^3, **(b)** 0.032 e/Bohr^3, **(c)** 0.022 e/Bohr^3, **(d)** 0.012 e/Bohr^3.

Suplemental Information References

[Ref S1] Blagoveshchenskii, N. M.; Novikov, A. G.; Puchkov, A. V.; Savostin, V. V. Microscopic properties of liquid gallium from quasi elastic neutron scattering experiments. *JETP Letters.* **2014,** *100 (5)*, 340-345.