

## Supplementary Information

### Electronic excited states of monobromosilylene molecules including the spin-orbit-coupling

Lili Bian<sup>a</sup>, Shimin Shan<sup>b</sup>, Yi Lian<sup>a</sup>, Lidan Xiao<sup>a</sup>, Di Liu<sup>a</sup>, Hang Lv<sup>\*a</sup>, Haifeng Xu<sup>\*a</sup>, Bing Yan<sup>\*a</sup>

<sup>a</sup> Institute of Atomic and Molecular Physics, Jilin University, Changchun 130012, China

<sup>b</sup> School of Semiconductors and Physics, North University of China, Taiyuan, 030051, China

**Table S1. Equilibrium geometries of HSiBr as a function of different basis set**

	CC-PVTZ-f12	CC-PVQZ-f12	CBS(3, 4)
Ground state( $X^1A'$ )			
$R_{Si-H}$ (Å)	1.517	1.517	1.517
$R_{Si-Br}$ (Å)	2.243	2.244	2.244
$\angle H-Si-Br$ (deg)	94.5	94.5	94.5
First excited state( $A^1A''$ )			
$R_{Si-H}$ (Å)	1.508	1.508	1.509
$R_{Si-Br}$ (Å)	2.213	2.214	2.215
$\angle H-Si-Br$ (deg)	117.9	117.8	117.8
Lowest triplet state( $a^3A''$ )			
$R_{Si-H}$ (Å)	1.485	1.485	1.484
$R_{Si-Br}$ (Å)	2.209	2.210	2.210
$\angle H-Si-Br$ (deg)	115.9	115.9	115.9

**Table S2. Equilibrium geometries of spin-coupled states as a function of different basis set**

	CC-PVTZ-f12	CC-PVQZ-f12	CBS(3, 4)
#1			
$R_{\text{Si-H}} (\text{Å})$	1.516	1.516	1.516
$R_{\text{Si-Br}} (\text{Å})$	2.244	2.245	2.245
$\angle \text{H-Si-Br (deg)}$	94.5	94.5	94.5
#2			
$R_{\text{Si-H}} (\text{Å})$	1.486	1.485	1.485
$R_{\text{Si-Br}} (\text{Å})$	2.210	2.210	2.211
$\angle \text{H-Si-Br (deg)}$	116.2	116.0	115.9
#3			
$R_{\text{Si-H}} (\text{Å})$	1.486	1.485	1.485
$R_{\text{Si-Br}} (\text{Å})$	2.210	2.210	2.211
$\angle \text{H-Si-Br (deg)}$	116.2	116.0	115.9
#4			
$R_{\text{Si-H}} (\text{Å})$	1.485	1.485	1.485
$R_{\text{Si-Br}} (\text{Å})$	2.210	2.210	2.210
$\angle \text{H-Si-Br (deg)}$	116.1	116.1	116.0
#5			
$R_{\text{Si-H}} (\text{Å})$	1.509	1.509	1.509
$R_{\text{Si-Br}} (\text{Å})$	2.215	2.215	2.215
$\angle \text{H-Si-Br (deg)}$	117.6	117.6	117.6

**Table S3. Vertical transition energy and oscillator strength as a function of different basis set**

state	VTE <sup>3</sup> (eV)			oscillator strength	
	CC-PVTZ-f12	CC-PVQZ-f12	CBS	CC-PVTZ-f12	CC-PVQZ-f12
X <sup>1</sup> A'	0	0	0		□
a <sup>3</sup> A''	1.498	1.503	1.507		□
A <sup>1</sup> A''	2.500	2.507	2.512	1.47×10 <sup>-2</sup>	1.49×10 <sup>-2</sup>
2 <sup>3</sup> A''	4.320	4.348	4.368		□
1 <sup>3</sup> A'	4.346	4.353	4.358		□
2 <sup>3</sup> A'	4.482	4.516	4.541		□
2 <sup>1</sup> A''	4.616	4.643	4.663	9.17×10 <sup>-3</sup>	9.21×10 <sup>-3</sup>
2 <sup>1</sup> A'	4.938	4.963	4.981	1.65×10 <sup>-2</sup>	1.56×10 <sup>-2</sup>
3 <sup>1</sup> A'	5.282	5.285	5.287	8.67×10 <sup>-2</sup>	8.82×10 <sup>-2</sup>
3 <sup>3</sup> A''	5.370	5.39	5.405		□
3 <sup>1</sup> A''	5.628	5.645	5.657	4.44×10 <sup>-5</sup>	3.85×10 <sup>-5</sup>
4 <sup>1</sup> A'	5.640	5.648	5.654	6.21×10 <sup>-2</sup>	6.41×10 <sup>-2</sup>
3 <sup>3</sup> A'	6.625	6.651	6.670		□
4 <sup>3</sup> A''	6.932	6.963	6.986		□
5 <sup>3</sup> A''	6.978	6.997	7.011		□
4 <sup>3</sup> A'	7.020	7.045	7.063		□
4 <sup>1</sup> A''	7.155	7.184	7.205	6.02×10 <sup>-3</sup>	5.98×10 <sup>-3</sup>
1 <sup>5</sup> A''	7.748	7.78	7.803		□
1 <sup>5</sup> A'	7.975	8.01	8.036		□
2 <sup>5</sup> A''	8.702	8.728	8.747		□

**Table S4. Vertical transition energy, oscillator strength, and composition of spin-orbit coupled states of HSiBr at the MRCI-F12/cc-pVQZ-F12 level**

State	VTE <sup>a</sup> (eV)	Oscillator strength	Compositions of states
#1	0	0	99.91% 1 <sup>1</sup> A', 0.02% 3 <sup>3</sup> A', 0.04% 1 <sup>3</sup> A'', 0.04% 2 <sup>3</sup> A'', 0.01% 4 <sup>3</sup> A''
#2	1.500	8.76×10 <sup>-8</sup>	99.88% 1 <sup>3</sup> A'', 0.04% 2 <sup>3</sup> A', 0.03% 2 <sup>1</sup> A'', 0.01% 1 <sup>3</sup> A'
#3	1.500	7.70×10 <sup>-7</sup>	99.90% 1 <sup>3</sup> A'', 0.04% 2 <sup>3</sup> A', 0.03% 2 <sup>3</sup> A''
#4	1.500	9.68×10 <sup>-6</sup>	99.86% 1 <sup>3</sup> A'', 0.05% 2 <sup>3</sup> A'', 0.03% 1 <sup>1</sup> A', 0.03% 2 <sup>1</sup> A'
#5	2.494	1.48×10 <sup>-2</sup>	99.69% 1 <sup>1</sup> A'', 0.16% 2 <sup>3</sup> A', 0.12% 2 <sup>3</sup> A'', 0.03% 1 <sup>3</sup> A', 0.01% 4 <sup>3</sup> A'
#6	4.266	3.50×10 <sup>-7</sup>	76.05% 2 <sup>3</sup> A'', 2.50% 1 <sup>3</sup> A', 21.30% 2 <sup>3</sup> A', 0.12% 3 <sup>3</sup> A'', 0.01% 1 <sup>3</sup> A''
#7	4.266	3.65×10 <sup>-6</sup>	75.52% 2 <sup>3</sup> A'', 2.81% 1 <sup>3</sup> A', 21.56% 2 <sup>3</sup> A', 0.08% 3 <sup>1</sup> A'', 0.01% 2 <sup>1</sup> A'', 0.01% 1 <sup>1</sup> A''
#8	4.316	1.49×10 <sup>-3</sup>	95.47% 2 <sup>3</sup> A'', 1.26% 1 <sup>3</sup> A', 0.68% 3 <sup>3</sup> A'', 0.04% 2 <sup>3</sup> A', 0.03% 1 <sup>3</sup> A'', 2.36% 2 <sup>1</sup> A', 0.07% 3 <sup>1</sup> A', 0.06% 4 <sup>1</sup> A', 0.02% 1 <sup>1</sup> A'
#9	4.352	1.10×10 <sup>-4</sup>	96.68% 1 <sup>3</sup> A', 0.26% 2 <sup>3</sup> A'', 1.50% 2 <sup>3</sup> A', 0.07% 3 <sup>3</sup> A', 0.06% 4 <sup>3</sup> A'', 0.04% 3 <sup>3</sup> A'', 0.03% 1 <sup>5</sup> A'', 1.34% 2 <sup>1</sup> A'', 0.03% 2 <sup>5</sup> A''
#10	4.357	2.04×10 <sup>-9</sup>	97.07% 1 <sup>3</sup> A', 1.36% 2 <sup>3</sup> A'', 1.24% 2 <sup>3</sup> A', 0.07% 3 <sup>3</sup> A', 0.02% 2 <sup>5</sup> A'', 0.05% 4 <sup>1</sup> A'', 0.15% 2 <sup>1</sup> A'', 0.02% 1 <sup>1</sup> A'', 0.02% 1 <sup>5</sup> A'', 0.01% 3 <sup>1</sup> A''
#11	4.358	1.22×10 <sup>-5</sup>	95.92% 1 <sup>3</sup> A', 0.90% 2 <sup>3</sup> A', 2.90% 2 <sup>3</sup> A'', 0.07% 4 <sup>3</sup> A'', 0.08% 3 <sup>3</sup> A'', 0.01% 1 <sup>1</sup> A', 0.02% 2 <sup>1</sup> A', 0.05% 3 <sup>1</sup> A', 0.02% 1 <sup>5</sup> A'', 0.01% 4 <sup>1</sup> A'
#12	4.427	2.57×10 <sup>-3</sup>	71.54% 2 <sup>3</sup> A', 25.61% 2 <sup>1</sup> A'', 2.65% 1 <sup>3</sup> A', 0.03% 1 <sup>1</sup> A'', 0.14% 3 <sup>3</sup> A'', 0.01% 3 <sup>3</sup> A', 0.02% 4 <sup>3</sup> A''
#13	4.559	2.35×10 <sup>-6</sup>	75.86% 2 <sup>3</sup> A', 10.98% 2 <sup>3</sup> A'', 3.02% 3 <sup>3</sup> A'', 0.08% 1 <sup>3</sup> A', 0.04% 1 <sup>3</sup> A', 0.01% 3 <sup>1</sup> A'
#14	4.567	2.54×10 <sup>-5</sup>	75.94% 2 <sup>3</sup> A', 21.82% 2 <sup>3</sup> A'', 0.19% 1 <sup>3</sup> A', 0.22% 1 <sup>1</sup> A'', 0.05% 2 <sup>1</sup> A'', 1.78% 3 <sup>1</sup> A''
#15	4.688	6.38×10 <sup>-3</sup>	70.40% 2 <sup>1</sup> A'', 24.99% 2 <sup>3</sup> A', 0.15% 1 <sup>3</sup> A', 0.01% 4 <sup>3</sup> A', 4.24% 3 <sup>3</sup> A'', 0.14% 2 <sup>3</sup> A'', 0.06% 1 <sup>3</sup> A''
#16	4.991	1.68×10 <sup>-2</sup>	91.77% 2 <sup>1</sup> A', 0.04% 3 <sup>3</sup> A', 0.02% 4 <sup>3</sup> A', 0.03% 1 <sup>3</sup> A'', 1.60% 2 <sup>3</sup> A'', 7.50% 3 <sup>3</sup> A'', 0.05% 4 <sup>3</sup> A''
#17	5.290	7.04×10 <sup>-2</sup>	97.47% 3 <sup>1</sup> A', 0.04% 1 <sup>3</sup> A', 0.04% 2 <sup>3</sup> A', 0.04% 4 <sup>3</sup> A', 0.1% 3 <sup>3</sup> A', 0.01% 5 <sup>3</sup> A', 1.92% 3 <sup>3</sup> A'', 0.02% 2 <sup>3</sup> A'', 0.25% 4 <sup>3</sup> A'', 0.01% 5 <sup>3</sup> A'', , 0.01% 1 <sup>3</sup> A'', 0.1% 2 <sup>1</sup> A'
#18	5.416	2.78×10 <sup>-4</sup>	96.39% 3 <sup>3</sup> A'', 0.35% 3 <sup>1</sup> A', 0.07% 2 <sup>1</sup> A', 1.30% 2 <sup>3</sup> A'', 1.80% 2 <sup>3</sup> A', 0.06% 1 <sup>3</sup> A'
#19	5.420	1.97×10 <sup>-4</sup>	95.32% 3 <sup>3</sup> A'', 1.95% 2 <sup>3</sup> A', 0.24% 3 <sup>1</sup> A'', 2.39% 2 <sup>1</sup> A'', 0.06% 1 <sup>3</sup> A', 0.01% 3 <sup>1</sup> A', 0.01% 1 <sup>1</sup> A''
#20	5.426	1.01×10 <sup>-3</sup>	88.46% 3 <sup>3</sup> A'', 0.02% 2 <sup>3</sup> A', 1.39% 2 <sup>3</sup> A'', 0.02% 3 <sup>3</sup> A', 6.47% 2 <sup>1</sup> A', 1.94% 4 <sup>1</sup> A', 1.65% 3 <sup>1</sup> A'
#21	5.657	2.74×10 <sup>-5</sup>	97.84% 3 <sup>1</sup> A'', 1.09% 2 <sup>3</sup> A', 0.22% 3 <sup>3</sup> A'', 0.03% 4 <sup>3</sup> A', 0.01%

			3 <sup>3</sup> A',0.78% 2 <sup>3</sup> A'', 0.01% 2 <sup>1</sup> A''
#22	5.674	6.07×10 <sup>-2</sup>	97.53% 4 <sup>1</sup> A', 0.26% 4 <sup>3</sup> A', 0.03% 3 <sup>3</sup> A', 0.17% 2 <sup>3</sup> A'', 1.77% 3 <sup>3</sup> A'', 0.02% 1 <sup>3</sup> A', 0.08% 4 <sup>3</sup> A'', 0.08% 5 <sup>3</sup> A'', 0.01% 3 <sup>1</sup> A', 0.07% 2 <sup>1</sup> A'
#23	6.615	8.10×10 <sup>-7</sup>	87.92% 3 <sup>3</sup> A', 0.03% 1 <sup>3</sup> A', 11.62% 4 <sup>3</sup> A'', 0.38% 5 <sup>3</sup> A'', 0.04% 1 <sup>5</sup> A''
#24	6.615	5.17×10 <sup>-6</sup>	87.7% 3 <sup>3</sup> A', 11.78% 4 <sup>3</sup> A'', 0.39% 5 <sup>3</sup> A'', 0.02% 2 <sup>1</sup> A', 0.04% 3 <sup>1</sup> A', 0.04% 1 <sup>5</sup> A'', 0.01% 4 <sup>1</sup> A'
#25	6.632	3.35×10 <sup>-4</sup>	94.28% 3 <sup>3</sup> A', 0.05% 1 <sup>3</sup> A', 4.57% 4 <sup>1</sup> A'', 0.06% 1 <sup>5</sup> A'', 0.01% 2 <sup>1</sup> A'', 0.01% 3 <sup>1</sup> A''
#26	6.974	5.61×10 <sup>-4</sup>	99.01% 4 <sup>3</sup> A'', 0.19% 5 <sup>3</sup> A'', 0.38% 4 <sup>3</sup> A', 0.06% 1 <sup>3</sup> A', 0.05% 1 <sup>5</sup> A'', 0.18% 3 <sup>1</sup> A', 0.10% 4 <sup>1</sup> A'
#27	7.013	1.89×10 <sup>-6</sup>	80.24% 4 <sup>3</sup> A'', 5.58% 5 <sup>3</sup> A'', 4.27% 4 <sup>3</sup> A', 9.55% 3 <sup>3</sup> A', 0.10% 1 <sup>3</sup> A', 0.01% 2 <sup>3</sup> A', 0.06% 1 <sup>5</sup> A'', 0.16% 1 <sup>5</sup> A', 0.02% 2 <sup>5</sup> A''
#28	7.015	3.47×10 <sup>-5</sup>	81.94% 4 <sup>3</sup> A'', 6.65% 5 <sup>3</sup> A'', 1.12% 4 <sup>3</sup> A', 9.86% 3 <sup>3</sup> A', 0.02% 1 <sup>3</sup> A', 0.02% 1 <sup>5</sup> A'', 0.18% 1 <sup>5</sup> A', 0.1% 3 <sup>1</sup> A', 0.06% 2 <sup>1</sup> A', 0.01% 1 <sup>1</sup> A', 0.01% 2 <sup>5</sup> A''
#29	7.047	6.32×10 <sup>-6</sup>	74.82% 4 <sup>3</sup> A', 19.60% 5 <sup>3</sup> A'', 4.08% 4 <sup>3</sup> A'', 0.07% 4 <sup>1</sup> A'', 0.15% 1 <sup>5</sup> A'', 0.16% 1 <sup>5</sup> A', 0.04% 2 <sup>5</sup> A'', 1.05% 3 <sup>3</sup> A', 0.01% 1 <sup>3</sup> A'
#30	7.050	1.07×10 <sup>-5</sup>	69.58% 4 <sup>3</sup> A', 10.87% 5 <sup>3</sup> A'', 1.99% 4 <sup>3</sup> A'', 1.12% 3 <sup>3</sup> A', 0.01% 1 <sup>1</sup> A', 0.02% 2 <sup>1</sup> A', 0.01% 3 <sup>1</sup> A', 0.07% 4 <sup>1</sup> A', 0.08% 1 <sup>5</sup> A'', 0.24% 1 <sup>5</sup> A', 0.04% 2 <sup>5</sup> A''
#31	7.056	1.79×10 <sup>-5</sup>	96.48% 4 <sup>3</sup> A', 2.48% 4 <sup>3</sup> A'', 0.41% 3 <sup>3</sup> A', 0.45% 4 <sup>1</sup> A'', 0.04% 3 <sup>1</sup> A'', 0.09% 1 <sup>5</sup> A'', 0.01% 1 <sup>3</sup> A', 0.01% 1 <sup>1</sup> A''
#32	7.069	9.49×10 <sup>-6</sup>	97.86% 5 <sup>3</sup> A'', 0.23% 4 <sup>3</sup> A'', 0.08% 4 <sup>3</sup> A', 0.1% 3 <sup>3</sup> A', 0.01% 3 <sup>1</sup> A', 0.01% 4 <sup>1</sup> A', 1.27% 1 <sup>5</sup> A', 0.44% 1 <sup>5</sup> A'', 0.12% 2 <sup>5</sup> A''
#33	7.082	3.08×10 <sup>-6</sup>	72.72% 5 <sup>3</sup> A'', 1.46% 4 <sup>3</sup> A'', 23.48% 4 <sup>3</sup> A', 0.99% 3 <sup>3</sup> A', 0.06% 4 <sup>1</sup> A'', 0.68% 1 <sup>5</sup> A', 0.51% 1 <sup>5</sup> A'', 0.1% 2 <sup>5</sup> A''
#34	7.088	2.87×10 <sup>-5</sup>	66.82% 5 <sup>3</sup> A'', 2.17% 4 <sup>3</sup> A'', 28.42% 4 <sup>3</sup> A', 1.08% 3 <sup>3</sup> A', 0.26% 4 <sup>1</sup> A', 0.05% 3 <sup>1</sup> A', 0.7% 1 <sup>5</sup> A', 0.4% 1 <sup>5</sup> A'', 0.06% 2 <sup>5</sup> A''
#35	7.205	5.61×10 <sup>-3</sup>	93.78% 4 <sup>1</sup> A'', 5.49% 3 <sup>3</sup> A', 0.63% 4 <sup>3</sup> A', 0.07% 1 <sup>3</sup> A'
#36	7.705	5.60×10 <sup>-11</sup>	81.88% 1 <sup>5</sup> A'', 17.84% 1 <sup>5</sup> A', 0.11% 2 <sup>5</sup> A'', 0.05% 4 <sup>3</sup> A', 0.12% 5 <sup>3</sup> A''
#37	7.705	1.63×10 <sup>-8</sup>	81.66% 1 <sup>5</sup> A'', 18.06% 1 <sup>5</sup> A', 0.14% 2 <sup>5</sup> A'', 0.06% 4 <sup>3</sup> A', 0.14% 5 <sup>3</sup> A''
#38	7.742	1.61×10 <sup>-8</sup>	93.1% 1 <sup>5</sup> A'', 5.6% 1 <sup>5</sup> A', 1.07% 2 <sup>5</sup> A'', 0.02% 4 <sup>3</sup> A'', 0.09% 4 <sup>3</sup> A', 0.18% 3 <sup>3</sup> A', 0.03% 1 <sup>3</sup> A',
#39	7.748	2.54×10 <sup>-8</sup>	90.94% 1 <sup>5</sup> A'', 5.38% 1 <sup>5</sup> A', 0.6% 2 <sup>5</sup> A'', 0.29% 5 <sup>3</sup> A'', 0.04% 4 <sup>3</sup> A', 0.04% 3 <sup>3</sup> A', 0.02% 1 <sup>3</sup> A'
#40	7.761	1.02×10 <sup>-7</sup>	98.15% 1 <sup>5</sup> A'', 0.42% 1 <sup>5</sup> A', 1.1% 2 <sup>5</sup> A'', 0.16% 5 <sup>3</sup> A'', 0.07% 3 <sup>3</sup> A', 0.06% 4 <sup>3</sup> A', 0.02% 1 <sup>3</sup> A',
#41	7.988	7.97×10 <sup>-11</sup>	95.93% 1 <sup>5</sup> A', 0.7% 1 <sup>5</sup> A'', 2.66% 2 <sup>5</sup> A'', 0.04% 4 <sup>3</sup> A'', 0.67% 5 <sup>3</sup> A''
#42	7.996	4.25×10 <sup>-10</sup>	90.84% 1 <sup>5</sup> A', 5.36% 1 <sup>5</sup> A'', 3.32% 2 <sup>5</sup> A'', 0.02% 4 <sup>3</sup> A'', 0.42%

			5 <sup>3</sup> A''
#43	8.025	1.14×10 <sup>-8</sup>	90.2% 1 <sup>5</sup> A', 8.16% 1 <sup>5</sup> A'', 0.4% 2 <sup>5</sup> A'', 0.04% 4 <sup>3</sup> A'', 1.16% 5 <sup>3</sup> A'', 0.01% 1 <sup>3</sup> A'', 0.01% 3 <sup>3</sup> A''
#44	8.059	1.53×10 <sup>-9</sup>	80.64% 1 <sup>5</sup> A', 17.42% 1 <sup>5</sup> A'', 1.19% 2 <sup>5</sup> A'', 0.03% 4 <sup>3</sup> A'', 0.7% 5 <sup>3</sup> A'', 0.02% 1 <sup>3</sup> A''
#45	8.062	3.31×10 <sup>-8</sup>	81.83% 1 <sup>5</sup> A', 16.66% 1 <sup>5</sup> A'', 0.62% 2 <sup>5</sup> A'', 0.85% 5 <sup>3</sup> A'', 0.03% 1 <sup>3</sup> A''
#46	8.727	4.29×10 <sup>-9</sup>	99.04% 2 <sup>5</sup> A'', 0.6% 1 <sup>5</sup> A'', 0.2% 1 <sup>5</sup> A', 0.12% 5 <sup>3</sup> A'', 0.02% 1 <sup>3</sup> A'
#47	8.727	3.81×10 <sup>-9</sup>	98.86% 2 <sup>5</sup> A'', 0.6% 1 <sup>5</sup> A'', 0.2% 1 <sup>5</sup> A', 0.12% 5 <sup>3</sup> A'', 0.02% 1 <sup>3</sup> A'
#48	8.737	1.47×10 <sup>-9</sup>	97.58% 2 <sup>5</sup> A'', 1.53% 1 <sup>5</sup> A'', 0.86% 1 <sup>5</sup> A', 0.01% 3 <sup>3</sup> A', 0.01% 1 <sup>3</sup> A'
#49	8.743	3.53×10 <sup>-10</sup>	96.52% 2 <sup>5</sup> A'', 0.48% 1 <sup>5</sup> A'', 2.78% 1 <sup>5</sup> A', 0.19% 5 <sup>3</sup> A'', 0.01% 4 <sup>3</sup> A''
#50	8.745	8.77×10 <sup>-11</sup>	96.38% 2 <sup>5</sup> A'', 0.93% 1 <sup>5</sup> A'', 2.58% 1 <sup>5</sup> A', 0.12% 5 <sup>3</sup> A''

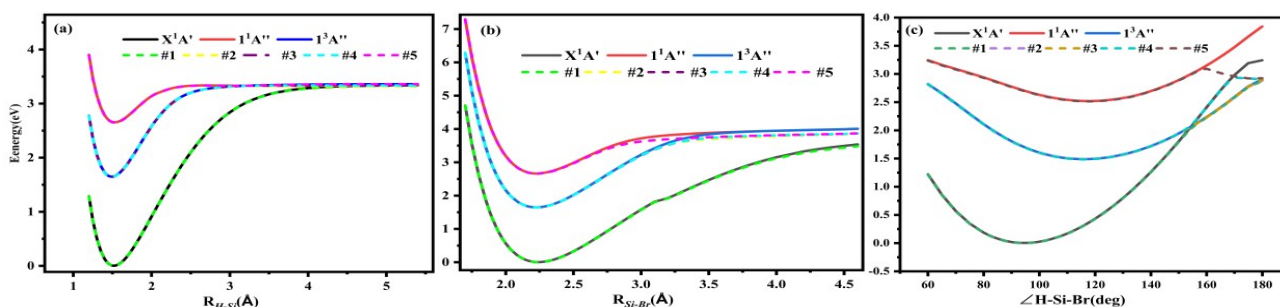
<sup>a</sup>The zero-point energy of the ground state was considered in the values of VTE. The unit of VTE is eV

**Table S5. Transition dipole moments (TDMs) corresponding to 50 states at the equilibrium geometries after considering soc effects**

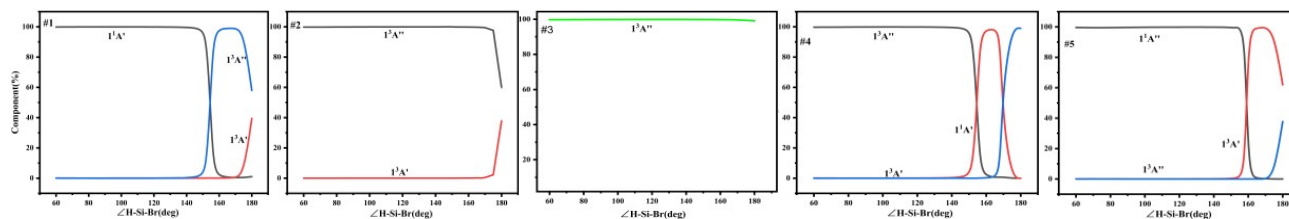
State	TDM(a.u.)	State	TDM(a.u.)
#1		#26	0.056
#2	0.001	#27	0.003
#3	0.005	#28	0.014
#4	0.015	#29	0.006
#5	0.473	#30	0.008
#6	0.002	#31	0.010
#7	0.006	#32	0.007
#8	0.116	#33	0.004
#9	0.031	#34	0.013
#10	0.000	#35	0.176
#11	0.010	#36	<10 <sup>-4</sup>
#12	0.151	#37	<10 <sup>-3</sup>
#13	0.005	#38	<10 <sup>-3</sup>
#14	0.015	#39	<10 <sup>-3</sup>
#15	0.231	#40	<10 <sup>-3</sup>
#16	0.363	#41	<10 <sup>-4</sup>
#17	0.724	#42	<10 <sup>-4</sup>
#18	0.045	#43	<10 <sup>-3</sup>
#19	0.038	#44	<10 <sup>-4</sup>
#20	0.085	#45	<10 <sup>-3</sup>
#21	0.014	#46	<10 <sup>-3</sup>
#22	0.649	#47	<10 <sup>-3</sup>
#23	0.002	#48	<10 <sup>-4</sup>
#24	0.006	#49	<10 <sup>-4</sup>
#25	0.045	#50	<10 <sup>-4</sup>

**Table S6. The adiabatic dissociation channels and the corresponding dissociation energies (eV), electronic states (Corresponds to the Fig. 1 in the main text to provide accurate values)**

Dissociation channel	Energy of dissociation limit (eV)	Electronic states
"H+ SiBr"		
H ( $^2S_g$ ) + SiBr ( $X^2\Pi$ )	3.35	$1^1A', 1^1A'', 1^3A', 1^3A''$
H ( $^2S_g$ ) + SiBr ( $a^4\Sigma^-$ )	6.23	$2^3A'', 1^5A''$
H ( $^2S_g$ ) + SiBr ( $B^2\Sigma^+$ )	6.32	$2^1A', 2^3A'$
H ( $^2S_g$ ) + SiBr ( $A^2\Delta$ )	7.54	$3^3A', 3^3A'', 3^1A', 2^1A''$ ,
H ( $^2S_g$ ) + SiBr ( $b^4\Pi$ )	7.91	$4^3A', 4^3A'', 1^5A', 2^5A''$ ,
H ( $^2S_g$ ) + SiBr ( $C^2\Sigma^-$ )	8.05	$3^1A'', 5^3A''$
H ( $^2S_g$ ) + SiBr ( $D^2\Pi$ )	8.21	$4^1A', 4^1A''$
"SiH + Br"		
HSi ( $X^2\Pi$ ) + Br ( $^2P_u$ )	3.97	$1^1A', 1^1A'', 2^1A', 2^1A'', 3^1A', 3^1A'', 1^3A',$ $1^3A'', 2^3A', 2^3A'', 3^3A', 3^3A''$
HSi ( $a^4\Sigma^-$ ) + Br ( $^2P_u$ )	5.70	$4^3A', 4^3A'', 5^3A'', 1^5A', 1^5A'', 2^5A''$
HSi ( $A^2\Delta$ ) + Br ( $^2P_u$ )	6.96	$4^1A', 4^1A''$



**Fig. S1** PECs of HSiBr at the MRCI-F12/cc-pVQZ-F12 level for the lowest three states considering SOC effect (dashed line) and not considering SOC (solid line) effect: (a) along the H-Si bond length; (b) along the Si-Br bond length; (c) along the H-Si-Br bond angle; the other both geometric constants are fixed at the respective equilibrium values of the ground state.



**Fig. S2** The spin-free components of the spin-coupled states #1–5: along the H–Si–Br bond angle. For each row, the other geometric constants are fixed at their respective equilibrium values of the ground state.