

## Electronic Supplementary Information

### Mechanism and structure-activity relationship of H<sub>2</sub> and CO<sub>2</sub> activations at the ZnO/Cu catalyst interface

Xin Xin,<sup>ab</sup> Peng Gao,<sup>\*abc</sup> and Shenggang Li<sup>\*abcd</sup>

<sup>a</sup> CAS Key Laboratory of Low-Carbon Conversion Science and Engineering,  
Shanghai Advanced Research Institute, Chinese Academy of Sciences, Shanghai  
201203, P. R. China

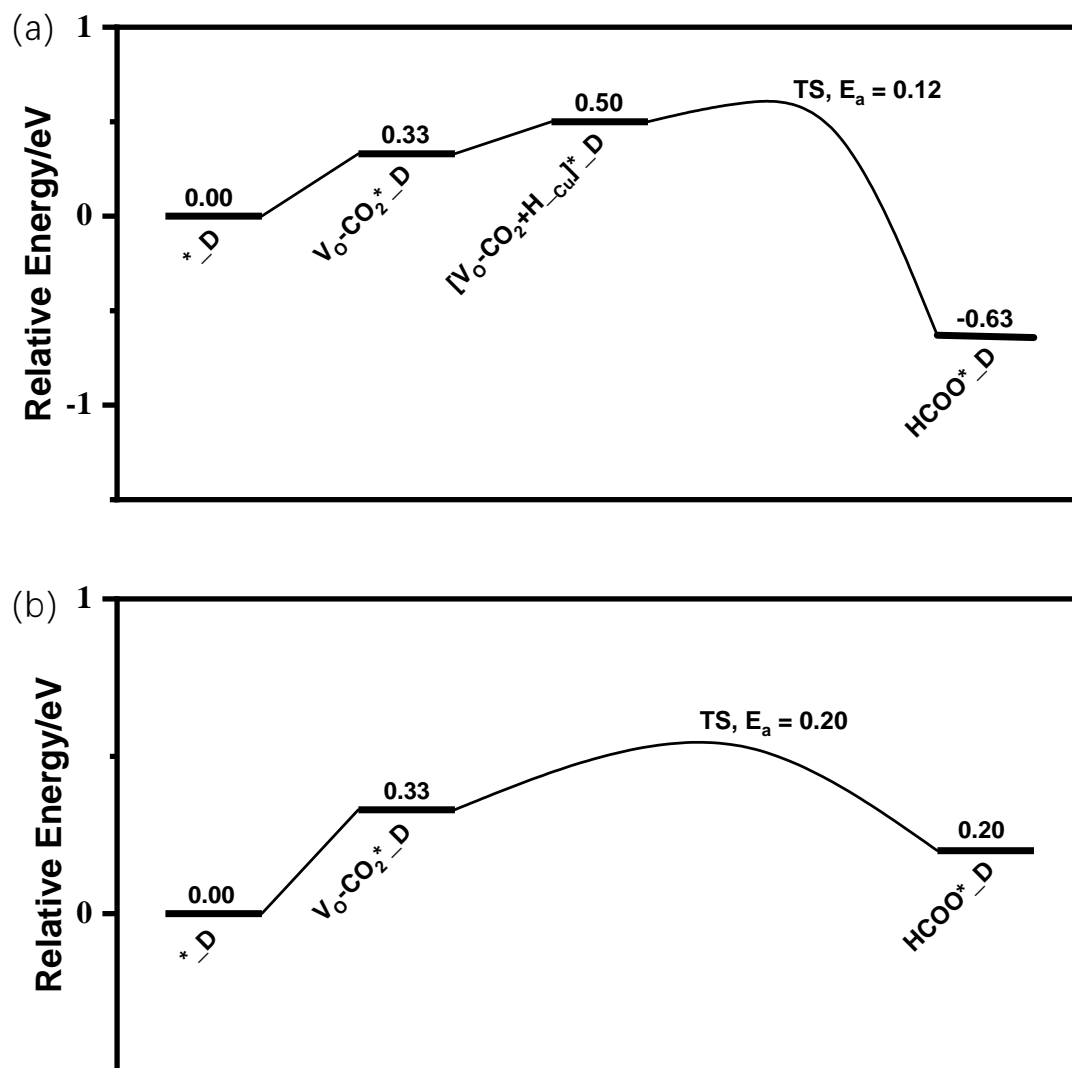
<sup>b</sup> University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, P. R. China

<sup>c</sup> State Key Laboratory of Low Carbon Catalysis and Carbon Dioxide Utilization,  
Shanghai Advanced Research Institute, Chinese Academy of Sciences, Shanghai  
201210, China

<sup>d</sup> School of Physical Science and Technology, ShanghaiTech University, Shanghai  
201210, P. R.

*\*Corresponding author. Tel: +86-021-20350994.*

*E-mail: gaopeng@sari.ac.cn (P. Gao), lisg@sari.ac.cn (S. Li).*



**Fig. S1** Potential energy profiles for  $V_O\text{-CO}_2^*$  (a) hydrogenation to the  $\text{HCOO}^*$  intermediate and (b) direct dissociation over the defective  $W_3^1(111)$  surface involving five Cu layers.

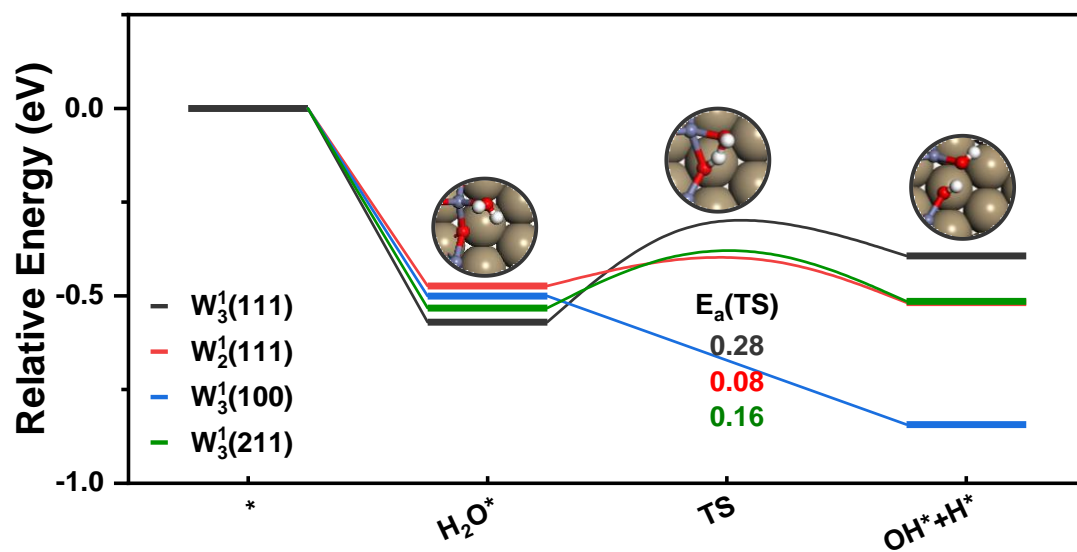
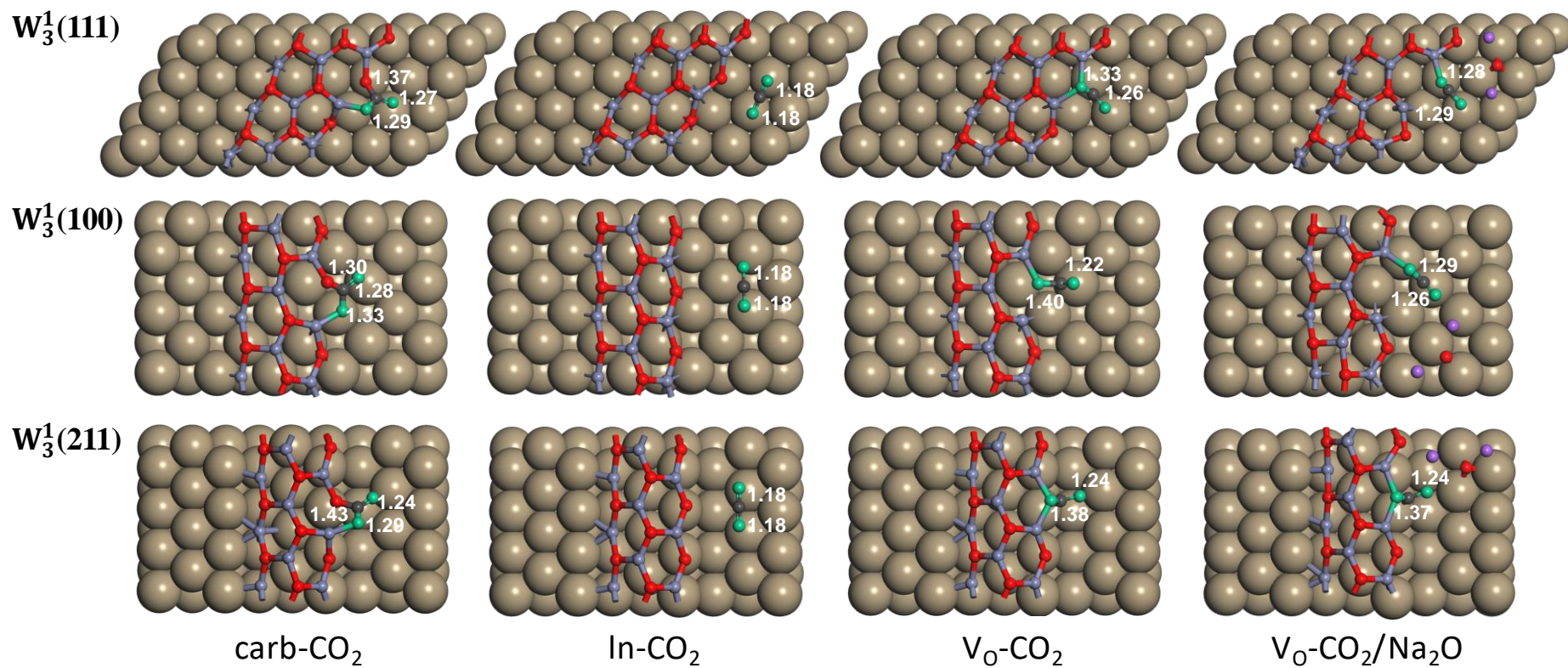
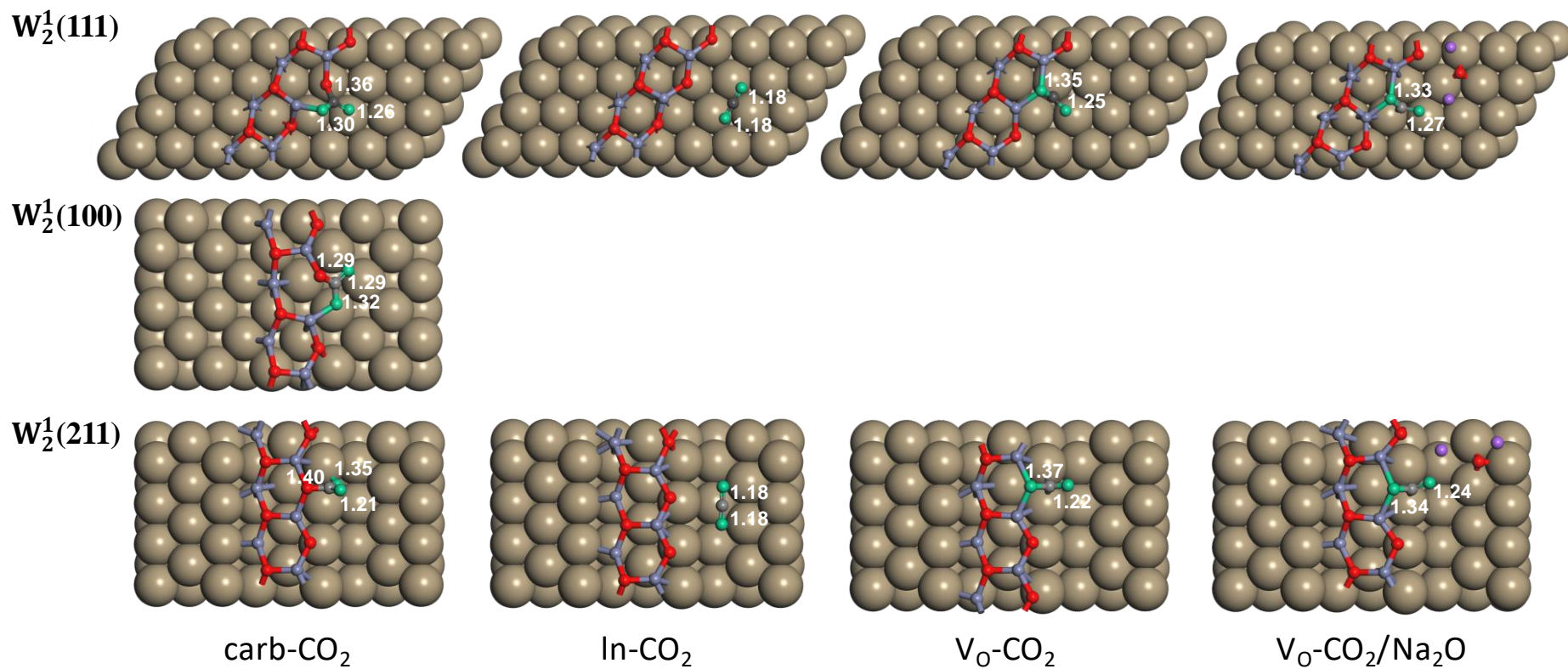


Fig. S2 Potential energy profiles for  $\text{H}_2\text{O}$  dissociation on the different ZnO/Cu catalyst models. The images display structures of the intermediates and transition states on the perfect  $W_3^1(111)$  surface.



**Fig. S3** The  $CO_2$  adsorption structures on the different ZnO/Cu catalyst models containing three-column ZnO ribbons. Brown: Cu, greyish blue: Zn, red: O, dark grey: C, green: O in  $CO_2$  molecules, purple: Na.



**Fig. S4** The CO<sub>2</sub> adsorption structures on the different ZnO/Cu catalyst models containing two-column ZnO ribbons. Brown: Cu, greyish blue: Zn, red: O, dark grey: C, green: O in CO<sub>2</sub> molecules, purple: Na.

**Table S1.** Activation energies ( $E_a$ , eV) and reaction energies ( $E_r$ , eV) of  $H_2$  dissociation at the ZnO/Cu interface and the Cu surface.

	Interface		Cu surface	
	$E_a$	$E_r$	$E_a$	$E_r$
$W_3^1(111)$	0.26	-0.96	0.47	-0.05
$W_2^1(111)$	0.18	-1.11	0.50	0.14
$W_3^1(100)$	0.26	-0.59	0.49	-0.16
$W_2^1(100)$	-	-	0.37	-0.60
$W_3^1(211)$	0.27	-0.86	0.38	-0.57
$W_2^1(211)$	0.45	-1.02	0.41	-0.57

**Table S2.** The average formation energy of an  $V_O$  site in different ZnO ribbons with gas phase  $O_2$  ( $\Delta E_{f,V_O,O_2}$ ) or  $H_2/H_2O$  ( $\Delta E_{f,V_O,H_2/H_2O}$ ) as the reference state. The ZnO ribbons from the right to the left are represented as the first, second, or third column of ZnO ribbons, respectively.

Reference State	Surface	Number of Columns of ZnO Ribbons		
		One	Two	Three
Gas phase $O_2$	$W_3^1(111)$	2.94	3.99	3.54
	$W_2^1(111)$	3.05	3.52	
	$W_3^1(100)$	2.81	-	-
	$W_3^1(211)$	3.27	4.16	-
	$W_2^1(211)$	3.00	2.92	
Gas phase $H_2/H_2O$	$W_3^1(111)$	-0.14	0.90	0.45
	$W_2^1(111)$	-0.04	0.43	
	$W_3^1(100)$	-0.28	-	-
	$W_3^1(211)$	0.18	1.07	-
	$W_2^1(211)$	-0.09	-0.17	

**Table S3.** Activation energies ( $E_a$ , eV) and reaction energies ( $E_r$ , eV) for  $H_2O$  dissociation on ZnO ribbons to form Brønsted sites, and hydrogen spillover to form Brønsted acid sites ( $H_{sp1}$ ),  $H_2O$  molecules ( $H_{sp2}$ ).

	<b>H<sub>2</sub>O dissociation</b>		<b>H<sub>sp1</sub></b>		<b>H<sub>sp2</sub></b>	
	<b>E<sub>a</sub></b>	<b>E<sub>r</sub></b>	<b>E<sub>a</sub></b>	<b>E<sub>r</sub></b>	<b>E<sub>a</sub></b>	<b>E<sub>r</sub></b>
<b>W<sub>3</sub><sup>1</sup>(111)</b>	0.28	0.18	0.74	-0.55	0.94	0.35
<b>W<sub>2</sub><sup>1</sup>(111)</b>	0.08	-0.04	0.50	-0.83	0.91	0.44
<b>W<sub>3</sub><sup>1</sup>(100)</b>	-	-0.34	0.60	-0.49	0.87	-0.15
<b>W<sub>3</sub><sup>1</sup>(211)</b>	0.16	0.02	1.08	-0.26	0.86	0.69
<b>W<sub>2</sub><sup>1</sup>(211)</b>	-	-	1.08	-0.50	0.79	0.42



**Table S4.** Alterations in the Bader charges of Zn, Cu, and O atoms around the adsorption molecules before and after adsorbing CO<sub>2</sub>.

	carb-CO <sub>2</sub>			V <sub>o</sub> -CO <sub>2</sub>	
	Cu	Zn	O	Cu	Zn
<b>W<sub>3</sub><sup>1</sup>(111)</b>	0.17	0.11	-0.09	0.22 / 0.13	0.29 / 0.23
<b>W<sub>2</sub><sup>1</sup>(111)</b>	0.19	0.08	-0.10	0.20 / 0.17	0.28 / 0.26
<b>W<sub>3</sub><sup>1</sup>(100)</b>	0.17 / -0.02	0.07	-0.05	0.16	0.38
<b>W<sub>2</sub><sup>1</sup>(100)</b>	0.18 / 0.01	0.05	-0.05	-	-
<b>W<sub>3</sub><sup>1</sup>(211)</b>	-	0.06	-0.01	0.19	0.38 / 0.32
<b>W<sub>2</sub><sup>1</sup>(211)</b>	0.02 / -0.05	-	-0.08	0.17 / 0.13	0.25 / 0.25

**Table S5.** Calculated Bader charges of ZnO and Cu before and after adsorbing CO<sub>2</sub> molecules, and Bader charges for the CO<sub>2</sub> adsorbate in different ZnO/Cu catalyst models.

	carb-CO <sub>2</sub>					V <sub>o</sub> -CO <sub>2</sub>				
	CO <sub>2</sub>	ZnO		Cu		CO <sub>2</sub>	ZnO		Cu	
		before	after	before	after		before	after	before	after
<b>W<sub>3</sub><sup>1</sup>(111)</b>	-0.18	-0.68	-0.69	0.68	0.87	-0.99	-0.10	0.40	0.10	0.59
<b>W<sub>2</sub><sup>1</sup>(111)</b>	-0.16	-0.63	-0.74	0.63	0.90	-1.03	-0.05	0.45	0.05	0.58
<b>W<sub>3</sub><sup>1</sup>(100)</b>	-0.18	-1.01	-0.99	1.00	1.17	-0.98	-0.55	-0.05	0.55	1.03
<b>W<sub>2</sub><sup>1</sup>(100)</b>	-0.18	-0.90	-0.97	0.90	1.14	-	-	-	-	-
<b>W<sub>3</sub><sup>1</sup>(211)</b>	-0.24	-0.74	-0.70	0.74	0.94	-1.03	-0.32	0.31	0.32	0.71
<b>W<sub>2</sub><sup>1</sup>(211)</b>	-0.11	-0.76	-0.78	0.76	0.89	-0.92	-0.11	0.33	0.11	0.59

**Table S6.** Adsorption energies ( $E_{\text{ads}}$ , eV) of  $\text{CO}_2$  molecules in different ZnO/Cu catalyst models.

	carb- $\text{CO}_2$	In- $\text{CO}_2$	$\text{V}_\text{O}$ - $\text{CO}_2$	$\text{V}_\text{O}$ - $\text{CO}_2/\text{Na}_2\text{O}$
$\text{W}_3^1(111)$	-0.29	-0.08	0.31	-0.04
$\text{W}_2^1(111)$	-0.38	-0.06	0.07	-0.33
$\text{W}_3^1(100)$	-0.91	-0.06	0.60	-0.12
$\text{W}_2^1(100)$	-1.19	-	-	-
$\text{W}_3^1(211)$	-0.11	-0.08	0.02	0.01
$\text{W}_2^1(211)$	-0.20	-0.07	-0.08	-0.27

**Table S7.** Activation energies ( $E_a$ , eV) and reaction energies ( $E_r$ , eV) of  $\text{CO}_2^*$  hydrogenation to  $\text{HCOO}^*$  intermediates.

	carb- $\text{CO}_2$		$\text{V}_\text{O}$ - $\text{CO}_2$		In- $\text{CO}_2$ ( $\text{H}_\text{o}$ )		In- $\text{CO}_2$ ( $\text{H}_\text{zn}$ )	
	$E_a$	$E_r$	$E_a$	$E_r$	$E_a$	$E_r$	$E_a$	$E_r$
$\text{W}_3^1(111)$	2.02	-0.53	0.18	-0.84	1.62	0.26	0.26	-1.05
$\text{W}_2^1(111)$	2.18	-0.33	0.25	-0.98	1.64	0.44	0.34	-0.91
$\text{W}_3^1(100)$	-	-	-	-1.18	1.42	-0.05	0.24	-1.25
$\text{W}_3^1(211)$	2.00	-0.05	0.30	-1.49	-	0.03	-	-

**Table S8.** Activation energies ( $E_a$ , eV) and reaction energies ( $E_r$ , eV) of  $V_O$ - $CO_2^*$  direct dissociation.

	$E_a$	$E_r$
$W_3^1(111)$	0.25	-0.23
$W_2^1(111)$	0.29	-0.01
$W_3^1(100)$	0.10	-0.30
$W_3^1(211)$	0.63	-0.34

**Table S9.** Activation energies ( $E_a$ , eV) and reaction energies ( $E_r$ , eV) of  $\text{CO}_2^*$  hydrogenation to  $\text{COOH}^*$  intermediates.

		$W_3^1(111)$		$W_2^1(111)$		$W_3^1(211)$	
		$E_a$	$E_r$	$E_a$	$E_r$	$E_a$	$E_r$
<b>carb-<math>\text{CO}_2</math></b>	$\text{CO}_2+\text{H}--\text{CO}_3\text{H}$	0.54	-0.27	0.56	-0.38	0.32	-0.23
	$\text{CO}_3\text{H}--\text{O}+\text{COOH}$	1.82	0.98	-	1.34	1.75	0.62
<b><math>\text{V}_\text{O}-\text{CO}_2</math></b>	$\text{CO}_2+\text{H}--\text{COOH}$	0.63	-0.39	1.29	-0.05	-	-0.52
<b>In-<math>\text{CO}_2</math></b>	$\text{CO}_2+\text{H}--\text{COOH}$	1.42	-0.11	1.52	-0.06	1.14	-0.73

**Table S10.** Optimized fractional coordinates of the perfect  $W_3^1(111)$  surface.

Cu Zn O

1.0000000000000000		
7.2781844327311198	-7.2781844327311198	0.0000000000000021
0.0000000000000000	14.5563688654622005	-14.5563688654622005
11.0863155154214006	11.0863155154214006	11.0863155154214006

Cu	Zn	O
96	9	9

Selective dynamics

Direct

0.4333333348234518	0.1333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.266666681567804	0.216666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.0981646714670812	0.0483035863947546	0.4776453291772750	T	T	T
0.1833333348234518	0.1333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.016666681567804	0.216666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3487443234960825	0.0489324659027091	0.4771937014502404	T	T	T
0.1833333348234518	0.0083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.016666681567804	0.091666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3460315756805677	0.1716959448561630	0.4764433970836114	T	T	T
0.4333333348234518	0.0083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.266666681567804	0.091666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.0954005974312093	0.1705960355359606	0.4765686076536646	T	T	T
0.9333333348234518	0.1333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.766666681567804	0.216666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.5991926513908985	0.0489701522733846	0.4774756275745020	T	T	T
0.6833333348234518	0.1333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.516666681567804	0.216666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8481436837675822	0.0483283594851906	0.4778177195782081	T	T	T

0.6833333348234518	0.0083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.5166666681567804	0.0916666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8468702246791097	0.1717695933709704	0.4765859215102015	T	T	T
0.9333333348234518	0.0083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.7666666681567804	0.0916666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.5971561019675741	0.1723878783136912	0.4759763336100490	T	T	T
0.4333333348234518	0.3833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.2666666681567804	0.4666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.0986822803676810	0.2962337319372155	0.4763760341529480	T	T	T
0.1833333348234518	0.3833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.0166666681567804	0.4666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3433483099395205	0.2958177690365216	0.4761649451332490	T	T	T
0.1833333348234518	0.2583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.0166666681567804	0.3416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3514628684467578	0.4266806873090781	0.4802351096770556	T	T	T
0.4333333348234518	0.2583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.2666666681567804	0.3416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.1020909845988223	0.4291078398044496	0.4749011506468026	T	T	T
0.9333333348234518	0.3833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.7666666681567804	0.4666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.5951514523242950	0.2983673016167031	0.4813562518058496	T	T	T
0.6833333348234518	0.3833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.5166666681567804	0.4666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8535715553061342	0.2993483373743131	0.4821862268134275	T	T	T
0.6833333348234518	0.2583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.5166666681567804	0.3416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8545731407570275	0.4295540069056369	0.4748301994250489	T	T	T
0.9333333348234518	0.2583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F



0.766666681567804	0.3416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.6049274950895664	0.4282920052923395	0.4750516412450813	T	T	T
0.4333333348234518	0.6333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.266666681567804	0.7166666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.1028769264883711	0.5535911781386728	0.4800269157376276	T	T	T
0.1833333348234518	0.6333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.016666681567804	0.7166666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3505185368689391	0.5508162848492969	0.4759871646688155	T	T	T
0.1833333348234518	0.5083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.016666681567804	0.5916666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3539492865609410	0.6768881039741240	0.4783429474750560	T	T	T
0.4333333348234518	0.5083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.266666681567804	0.5916666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.1026067360805810	0.6779522528410653	0.4755024092636079	T	T	T
0.9333333348234518	0.6333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.766666681567804	0.7166666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.6005888925509895	0.5505290375174162	0.4758931248160439	T	T	T
0.6833333348234518	0.6333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.516666681567804	0.7166666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8534701935172770	0.5533441843443703	0.4797690665776332	T	T	T
0.6833333348234518	0.5083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.516666681567804	0.5916666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8492379033644837	0.6765889327167549	0.4784015082739800	T	T	T
0.9333333348234518	0.5083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.766666681567804	0.5916666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.6000230064074920	0.6748810399577471	0.4835844368619936	T	T	T
0.4333333348234518	0.8833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.266666681567804	0.9666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F

0.1002589874401920	0.8009014545957175	0.4775233262227879	T	T	T
0.1833333348234518	0.8833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.0166666681567804	0.9666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3508368376284886	0.8007382575588180	0.4775804946494860	T	T	T
0.1833333348234518	0.7583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.0166666681567804	0.8416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3497931643365463	0.9250944451668931	0.4776890034780836	T	T	T
0.4333333348234518	0.7583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.2666666681567804	0.8416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.0998239620963447	0.9248137931198505	0.4775557167544986	T	T	T
0.9333333348234518	0.8833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.7666666681567804	0.9666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.6004181774437426	0.8000388439115402	0.4785207232328113	T	T	T
0.6833333348234518	0.8833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.5166666681567804	0.9666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8497761489449432	0.8001922416899599	0.4784314701435585	T	T	T
0.6833333348234518	0.7583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.5166666681567804	0.8416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8493558816628917	0.9244066838750039	0.4775457238151104	T	T	T
0.9333333348234518	0.7583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.7666666681567804	0.8416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.5990497855313172	0.9244355333031697	0.4775527790309160	T	T	T
0.1170049260631350	0.3668698497640711	0.6001691758104420	T	T	T
0.4613690731396889	0.3679749818682604	0.5995210573259718	T	T	T
0.7859461390067741	0.3626134519973652	0.6074321390011312	T	T	T
0.0850612251593079	0.4948288638276537	0.6580008253315653	T	T	T
0.4175800835539598	0.4958140543886977	0.6578018872278231	T	T	T
0.7486257708334596	0.4947480280403799	0.6576508951766667	T	T	T

0.0345806852683839	0.6125877211752440	0.5914573586394535	T	T	T
0.3772901575237878	0.6202198928221470	0.5918545325520166	T	T	T
0.7065926151595161	0.6204316241055603	0.5918735629951133	T	T	T
0.2640468450068872	0.3419252213898856	0.5603160954574425	T	T	T
0.5839114871431249	0.3258505063399483	0.5789630992789163	T	T	T
0.9092164490821432	0.3222050821569276	0.5812715275596267	T	T	T
0.2055067348669325	0.4490870238268466	0.6616278241051162	T	T	T
0.5367738597718736	0.4494092800486319	0.6617574458103025	T	T	T
0.8734043928932638	0.4512416698145873	0.6617295215524164	T	T	T
0.1877580742707126	0.5977074870968594	0.6308055570055894	T	T	T
0.5210292438188420	0.5994385719664472	0.6337172388777985	T	T	T
0.8512998959951037	0.5977080185239078	0.6304491603226000	T	T	T

**Table S11.** Optimized fractional coordinates of the defective  $W_3^1(111)$  surface.

Cu Zn O

1.0000000000000000		
7.2781844327311198	-7.2781844327311198	0.0000000000000021
0.0000000000000000	14.5563688654622005	-14.5563688654622005
11.0863155154214006	11.0863155154214006	11.0863155154214006

Cu	Zn	O
96	9	8

Selective dynamics

Direct

0.4333333348234518	0.1333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.266666681567804	0.2166666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.1006266495334624	0.0492360764108589	0.4779699134167392	T	T	T
0.1833333348234518	0.1333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.016666681567804	0.2166666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3503315571336756	0.0495268541664365	0.4774736900966934	T	T	T
0.1833333348234518	0.0083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.016666681567804	0.0916666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3517350620389356	0.1738537511750372	0.4775529417985777	T	T	T
0.4333333348234518	0.0083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.266666681567804	0.0916666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.0997913518899065	0.1719330478532855	0.4766107360632020	T	T	T
0.9333333348234518	0.1333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.766666681567804	0.2166666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.6003885457610567	0.0495008580546565	0.4772408570973496	T	T	T
0.6833333348234518	0.1333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.516666681567804	0.2166666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8506792247381759	0.0492323442470666	0.4776929674227565	T	T	T

0.6833333348234518	0.0083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.5166666681567804	0.0916666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8481625904728100	0.1724325670577527	0.4760313600187225	T	T	T
0.9333333348234518	0.0083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.7666666681567804	0.0916666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.5986071220371982	0.1738585864930722	0.4766557149716836	T	T	T
0.4333333348234518	0.3833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.2666666681567804	0.4666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.1045063298987363	0.2977796093337278	0.4793812370931029	T	T	T
0.1833333348234518	0.3833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.0166666681567804	0.4666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3555733690920750	0.2973692722290783	0.4759616445934213	T	T	T
0.1833333348234518	0.2583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.0166666681567804	0.3416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3527277160163685	0.4274318414112787	0.4751206596760291	T	T	T
0.4333333348234518	0.2583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.2666666681567804	0.3416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.1030349823258038	0.4291971317533023	0.4753948496406077	T	T	T
0.9333333348234518	0.3833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.7666666681567804	0.4666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.6029794345702321	0.3019344046505932	0.4807426127429861	T	T	T
0.6833333348234518	0.3833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.5166666681567804	0.4666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8523756837818377	0.2993628886897721	0.4830021851705449	T	T	T
0.6833333348234518	0.2583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.5166666681567804	0.3416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8526490789180817	0.4289932423690016	0.4738354799765379	T	T	T
0.9333333348234518	0.2583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F

0.766666681567804	0.3416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.6014786923330806	0.4240160818242502	0.4813066382018281	T	T	T
0.4333333348234518	0.6333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.266666681567804	0.7166666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.1042233473851805	0.5538565709712122	0.4812592626417505	T	T	T
0.1833333348234518	0.6333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.016666681567804	0.7166666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3512875378753925	0.5514484139702434	0.4767921558371549	T	T	T
0.1833333348234518	0.5083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.016666681567804	0.5916666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3545485306208737	0.6772992310979387	0.4773331202375017	T	T	T
0.4333333348234518	0.5083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.266666681567804	0.5916666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.1024050174355239	0.6776148498384313	0.4760819648657865	T	T	T
0.9333333348234518	0.6333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.766666681567804	0.7166666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.6007801332403550	0.5494113518981337	0.4753065288840931	T	T	T
0.6833333348234518	0.6333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.516666681567804	0.7166666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8527220805940109	0.5524440897530241	0.4775718080895733	T	T	T
0.6833333348234518	0.5083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.516666681567804	0.5916666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8491140042006154	0.6758366840056380	0.4802614588670954	T	T	T
0.9333333348234518	0.5083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.766666681567804	0.5916666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.6014931386401506	0.6749270129605995	0.4825790115673455	T	T	T
0.4333333348234518	0.8833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.266666681567804	0.9666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F

0.1006087890193988	0.8008051820110763	0.4776479821109456	T	T	T
0.1833333348234518	0.8833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.0166666681567804	0.9666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3516629074787682	0.8008479953609431	0.4772472807277717	T	T	T
0.1833333348234518	0.7583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.0166666681567804	0.8416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3509406142448641	0.9251271875215823	0.4775461847626146	T	T	T
0.4333333348234518	0.7583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.2666666681567804	0.8416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.1007590950587306	0.9250705230627138	0.4777425105812518	T	T	T
0.9333333348234518	0.8833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.7666666681567804	0.9666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.6020256625725708	0.8005914563025103	0.4779247788080913	T	T	T
0.6833333348234518	0.8833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.5166666681567804	0.9666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8507378454300870	0.8004416257350375	0.4785267499662863	T	T	T
0.6833333348234518	0.7583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.5166666681567804	0.8416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8505411437210028	0.9249201340935099	0.4777038249130449	T	T	T
0.9333333348234518	0.7583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.7666666681567804	0.8416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.6002694087370668	0.9249809135553280	0.4775604762802680	T	T	T
0.0827826143370135	0.3583800352048273	0.6123618895908779	T	T	T
0.4195173629038878	0.3768515833420771	0.5837054753053763	T	T	T
0.7803500605712795	0.3682483163852937	0.5894348926449318	T	T	T
0.0542031089155223	0.4914088836207851	0.6598426220701510	T	T	T
0.3882048388101650	0.4931296882595395	0.6599357056236982	T	T	T
0.7166120391672830	0.4891758921407398	0.6525137182780192	T	T	T

0.0084713637224343	0.6106775694075316	0.5911042213159474	T	T	T
0.3448653323644562	0.6137428944448683	0.5921196311336919	T	T	T
0.6801250615048301	0.6182499643577068	0.5917323190883227	T	T	T
0.2051977341074913	0.3239262955537143	0.5717947187102388	T	T	T
0.8812282811404896	0.3129063479195958	0.5848469442526479	T	T	T
0.1761765850351912	0.4468024112973517	0.6663347752151056	T	T	T
0.5049635648007484	0.4442852475246244	0.6581295170863004	T	T	T
0.8399894737134496	0.4447989781777511	0.6565520827265096	T	T	T
0.1578512456824008	0.5940207940647748	0.6323218974192282	T	T	T
0.4931530860476321	0.5958872136412376	0.6338837156157976	T	T	T
0.8228543256558574	0.5935294420444542	0.6296940362336185	T	T	T



**Table S12.** Optimized fractional coordinates of the perfect  $W_2^1(111)$  surface.

Cu Zn O

1.0000000000000000  
7.2781844327311198 -7.2781844327311198 0.0000000000000021  
0.0000000000000000 14.5563688654622005 -14.5563688654622005  
11.0863155154214006 11.0863155154214006 11.0863155154214006

Cu Zn O  
96 6 6

Selective dynamics

Direct

0.4333333348234518	0.1333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.266666681567804	0.2166666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.0990870814992694	0.0493598358266810	0.4774093576655006	T	T	T
0.1833333348234518	0.1333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.0166666681567804	0.2166666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3488845794747373	0.0493496359762133	0.4772445043973619	T	T	T
0.1833333348234518	0.0083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.0166666681567804	0.0916666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3489747125258539	0.1736261221324508	0.4772670753275712	T	T	T
0.4333333348234518	0.0083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.2666666681567804	0.0916666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.0983606062436564	0.1729578024084532	0.4775938055117755	T	T	T
0.9333333348234518	0.1333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.7666666681567804	0.2166666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.5988932409585539	0.0493325440403169	0.4773755653353882	T	T	T
0.6833333348234518	0.1333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.5166666681567804	0.2166666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8492989214421474	0.0493758467093846	0.4774859889527139	T	T	T

0.6833333348234518	0.0083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.5166666681567804	0.0916666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8472969507843021	0.1729038894937345	0.4776694401544668	T	T	T
0.9333333348234518	0.0083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.7666666681567804	0.0916666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.5982180234351586	0.1736706336994095	0.4774131105386583	T	T	T
0.4333333348234518	0.3833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.2666666681567804	0.4666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.0949366428966389	0.2950347086287490	0.4762891628545274	T	T	T
0.1833333348234518	0.3833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.0166666681567804	0.4666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3459506962128848	0.2965203892386908	0.4762403546652273	T	T	T
0.1833333348234518	0.2583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.0166666681567804	0.3416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3435147292611834	0.4209659991844287	0.4760407437078521	T	T	T
0.4333333348234518	0.2583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.2666666681567804	0.3416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.0996363649495360	0.4212184877412821	0.4754033789893748	T	T	T
0.9333333348234518	0.3833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.7666666681567804	0.4666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.5976365842378035	0.2978804584550348	0.4757457197024765	T	T	T
0.6833333348234518	0.3833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.5166666681567804	0.4666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8469229260539554	0.2965989617758362	0.4764239869400312	T	T	T
0.6833333348234518	0.2583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.5166666681567804	0.3416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8546387948454868	0.4241806976424718	0.4841380797499185	T	T	T
0.9333333348234518	0.2583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F

0.766666681567804	0.3416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.5947471985587592	0.4240714718365001	0.4843742266989828	T	T	T
0.4333333348234518	0.6333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.266666681567804	0.7166666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.1018197192390481	0.5532954252707049	0.4740828103525331	T	T	T
0.1833333348234518	0.6333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.016666681567804	0.7166666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3501455961311452	0.5502811413873371	0.4749144547393553	T	T	T
0.1833333348234518	0.5083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.016666681567804	0.5916666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3521738026553670	0.6762823045484982	0.4821532208768682	T	T	T
0.4333333348234518	0.5083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.266666681567804	0.5916666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.1049989763920116	0.6787819248743302	0.4766673023763781	T	T	T
0.9333333348234518	0.6333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.766666681567804	0.7166666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.6049641911520421	0.5538531304369889	0.4741086857505120	T	T	T
0.6833333348234518	0.6333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.516666681567804	0.7166666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8554225197358160	0.5557195903139714	0.4769803930140268	T	T	T
0.6833333348234518	0.5083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.516666681567804	0.5916666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8523801206450837	0.6788998716540627	0.4765220986406800	T	T	T
0.9333333348234518	0.5083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.766666681567804	0.5916666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.5999158545236507	0.6765334309086246	0.4815506051309243	T	T	T
0.4333333348234518	0.8833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.266666681567804	0.9666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F

0.1013184524175013	0.8015633321950143	0.4772950314966375	T	T	T
0.1833333348234518	0.8833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.0166666681567804	0.9666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3510246202377396	0.8008962205920637	0.4778275951496988	T	T	T
0.1833333348234518	0.7583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.0166666681567804	0.8416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3504422825815657	0.9252757157727498	0.4774930302251647	T	T	T
0.4333333348234518	0.7583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.2666666681567804	0.8416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.1000542747307652	0.9254114059860731	0.4773774779678234	T	T	T
0.9333333348234518	0.8833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.7666666681567804	0.9666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.5999524687037450	0.8004278225624247	0.4784546823660102	T	T	T
0.6833333348234518	0.8833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.5166666681567804	0.9666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8505669993849476	0.8011285258882442	0.4777872393685043	T	T	T
0.6833333348234518	0.7583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.5166666681567804	0.8416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8494844164175065	0.9250632936171241	0.4775265848351823	T	T	T
0.9333333348234518	0.7583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.7666666681567804	0.8416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.5997844886346038	0.9249937208763520	0.4776319399096772	T	T	T
0.1156584180501006	0.4849314772030631	0.5971680701843233	T	T	T
0.4584336801712730	0.4848106782517287	0.5977029861967587	T	T	T
0.7826547621429110	0.4798967290863742	0.6056347111723738	T	T	T
0.0867424072322153	0.6168535462611670	0.5913748530986209	T	T	T
0.4231031659190390	0.6210077176606914	0.5917607464040112	T	T	T
0.7514946550413312	0.6160924310789360	0.5913896824999431	T	T	T

0.2562604012170538	0.4537780379231090	0.5639107411675320	T	T	T
0.5756446621831188	0.4385264164164702	0.5865049285953605	T	T	T
0.9055413724017912	0.4379380921834166	0.5861750055211800	T	T	T
0.2246734826793509	0.5880322827995622	0.6264251296287463	T	T	T
0.5561781700252868	0.5882147775291240	0.6262458819482942	T	T	T
0.8894539796871537	0.5866306080127071	0.6244526142090518	T	T	T

**Table S13.** Optimized fractional coordinates of the defective  $W_2^1(111)$  surface.

Cu Zn O

1.0000000000000000		
7.2781844327311198	-7.2781844327311198	0.0000000000000021
0.0000000000000000	14.5563688654622005	-14.5563688654622005
11.0863155154214006	11.0863155154214006	11.0863155154214006

Cu	Zn	O
96	6	5

Selective dynamics

Direct

0.4333333348234518	0.1333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.266666681567804	0.216666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.1008384542153400	0.0501406563694258	0.4776352326717333	T	T	T
0.1833333348234518	0.1333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.016666681567804	0.216666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3507534002814888	0.0501464909326303	0.4774858132633542	T	T	T
0.1833333348234518	0.0083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.016666681567804	0.091666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3505640007509183	0.1742560444845279	0.4774846203113748	T	T	T
0.4333333348234518	0.0083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.266666681567804	0.091666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.0998897797412203	0.1739756879994380	0.4778420387310777	T	T	T
0.9333333348234518	0.1333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.766666681567804	0.216666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.6006772586624540	0.0501246610370890	0.4774143343503914	T	T	T
0.6833333348234518	0.1333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.516666681567804	0.216666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8509816730287664	0.0503368083663383	0.4776607314650153	T	T	T

0.6833333348234518	0.0083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.5166666681567804	0.0916666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8497638015176785	0.1743472576150998	0.4775715138293528	T	T	T
0.9333333348234518	0.0083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.7666666681567804	0.0916666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.6004273583728974	0.1745544067429821	0.4772198966468374	T	T	T
0.4333333348234518	0.3833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.2666666681567804	0.4666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.0993903900182133	0.2972075235327829	0.4766737713307025	T	T	T
0.1833333348234518	0.3833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.0166666681567804	0.4666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3497155975623576	0.2978727361837584	0.4774582074270628	T	T	T
0.1833333348234518	0.2583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.0166666681567804	0.3416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3543603638561013	0.4217935276942281	0.4746831704267255	T	T	T
0.4333333348234518	0.2583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.2666666681567804	0.3416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.1069075500723731	0.4238068587837820	0.4828345641447216	T	T	T
0.9333333348234518	0.3833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.7666666681567804	0.4666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.5984792978852064	0.2985920241368007	0.4767443862269460	T	T	T
0.6833333348234518	0.3833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.5166666681567804	0.4666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8494386030669038	0.2983507265997234	0.4756281648514193	T	T	T
0.6833333348234518	0.2583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.5166666681567804	0.3416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8501144427121594	0.4245480760018295	0.4848110124270760	T	T	T
0.9333333348234518	0.2583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F

0.766666681567804	0.3416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.5983666695892942	0.4245077897015625	0.4784279700103019	T	T	T
0.4333333348234518	0.6333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.266666681567804	0.7166666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.1059398122303238	0.5560270064734785	0.4766683592237623	T	T	T
0.1833333348234518	0.6333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.016666681567804	0.7166666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3527272292768475	0.5530645376992891	0.4731979621599203	T	T	T
0.1833333348234518	0.5083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.016666681567804	0.5916666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3559050309148976	0.6785135302382284	0.4781125263650404	T	T	T
0.4333333348234518	0.5083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.266666681567804	0.5916666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.1038711535341991	0.6793445689696987	0.4761198314394446	T	T	T
0.9333333348234518	0.6333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.766666681567804	0.7166666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.5975131116628335	0.5465664070541363	0.4792398422713845	T	T	T
0.6833333348234518	0.6333333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.516666681567804	0.7166666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8553905061257231	0.5547732884220057	0.4740659874645656	T	T	T
0.6833333348234518	0.5083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.516666681567804	0.5916666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8496109822788970	0.6771302326387476	0.4795005101262599	T	T	T
0.9333333348234518	0.5083333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.766666681567804	0.5916666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.6021905135127533	0.6755877177181880	0.4838564639837672	T	T	T
0.4333333348234518	0.8833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.266666681567804	0.9666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F



0.1018326895953121	0.8016302217413891	0.4776238887151467	T	T	T
0.1833333348234518	0.8833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.0166666681567804	0.9666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3522351218242610	0.8018685876278380	0.4775031181852127	T	T	T
0.1833333348234518	0.7583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.0166666681567804	0.8416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.3518305496054059	0.9259813698548590	0.4773936671437046	T	T	T
0.4333333348234518	0.7583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.2666666681567804	0.8416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.1011449520707193	0.9257951606756654	0.4775114811521313	T	T	T
0.9333333348234518	0.8833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.7666666681567804	0.9666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.6018140782403850	0.8008977361911667	0.4781370127739048	T	T	T
0.6833333348234518	0.8833333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.5166666681567804	0.9666666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8511258517959607	0.8010253995883577	0.4783166856943867	T	T	T
0.6833333348234518	0.7583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.5166666681567804	0.8416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.8510084873998170	0.9257489581942158	0.4776602383338323	T	T	T
0.9333333348234518	0.7583333340783938	0.2603887055110903	F	F	F
0.7666666681567804	0.8416666674117224	0.3698056472444549	F	F	F
0.6018241624780003	0.9258767456802461	0.4775576077613384	T	T	T
0.0636673594779583	0.4831288421596287	0.6086815154031813	T	T	T
0.3891669620625101	0.4921732386256907	0.5837843715255371	T	T	T
0.7476852848425369	0.4861973942981987	0.5873291062877571	T	T	T
0.0328114923078551	0.6170943631414190	0.5921600598617167	T	T	T
0.3701879576562114	0.6222249859580464	0.5921502466456102	T	T	T
0.6970723530509420	0.6175843612013412	0.5933374838315707	T	T	T

0.1765513070105268	0.4379099447218341	0.5823734597912414	T	T	T
0.8575174153824271	0.4358429115124215	0.5888368525672348	T	T	T
0.1717655135919192	0.5893154856348157	0.6272729665451474	T	T	T
0.5008017859123965	0.5876339042488320	0.6290886296059959	T	T	T
0.8325532576610037	0.5853809701106816	0.6256217133156459	T	T	T

**Table S14.** Optimized fractional coordinates of the perfect  $W_3^1(100)$  surface.

Cu Zn O

1.0000000000000000		
0.0000000000000000	10.9172766490966993	0.0000000000000000
0.0000000000000000	0.0000000000000000	18.1954610818278013
18.6390922163656008	0.0000000000000000	0.0000000000000000

Cu	Zn	O
90	9	9

Selective dynamics

Direct

0.1000000139077528	0.0600000023841858	0.3658732962432083	F	F	F
0.2666666805744171	0.0600000023841858	0.2682534075135834	F	F	F
0.2670493954030414	0.0599192562197926	0.4604835697623501	T	T	T
0.1000000139077528	0.1600000023841872	0.2682534075135834	F	F	F
0.1015385084844880	0.1590464044928538	0.4606393666843565	T	T	T
0.2666666805744171	0.1600000023841872	0.3658732962432083	F	F	F
0.4333333472410814	0.0600000023841858	0.3658732962432083	F	F	F
0.6000000139077528	0.0600000023841858	0.2682534075135834	F	F	F
0.6003701303905808	0.0598809380498111	0.4604737918701636	T	T	T
0.4333333472410814	0.1600000023841872	0.2682534075135834	F	F	F
0.4348267872795730	0.1590839216077487	0.4606213600354233	T	T	T
0.6000000139077528	0.1600000023841872	0.3658732962432083	F	F	F
0.7666666805744171	0.0600000023841858	0.3658732962432083	F	F	F
0.9333333472410814	0.0600000023841858	0.2682534075135834	F	F	F
0.9338266337735454	0.0599177919367081	0.4604898659739471	T	T	T
0.7666666805744171	0.1600000023841872	0.2682534075135834	F	F	F
0.7681778666765935	0.1589868323121713	0.4606167190809565	T	T	T
0.9333333472410814	0.1600000023841872	0.3658732962432083	F	F	F

0.1000000139077528	0.2600000023841886	0.3658732962432083	F	F	F
0.2666666805744171	0.2600000023841886	0.2682534075135834	F	F	F
0.2706365245212498	0.2563459138437756	0.4603041835327649	T	T	T
0.1000000139077528	0.3600000023841829	0.2682534075135834	F	F	F
0.1089861843779997	0.3547842567313740	0.4652516759000966	T	T	T
0.2666666805744171	0.3600000023841829	0.3658732962432083	F	F	F
0.4333333472410814	0.2600000023841886	0.3658732962432083	F	F	F
0.6000000139077528	0.2600000023841886	0.2682534075135834	F	F	F
0.6040762711157452	0.2564002739158818	0.4602598625000042	T	T	T
0.4333333472410814	0.3600000023841829	0.2682534075135834	F	F	F
0.4421004067514794	0.3547728281261694	0.4651858216466406	T	T	T
0.6000000139077528	0.3600000023841829	0.3658732962432083	F	F	F
0.7666666805744171	0.2600000023841886	0.3658732962432083	F	F	F
0.9333333472410814	0.2600000023841886	0.2682534075135834	F	F	F
0.9373940388904569	0.2563741181925246	0.4602789159447762	T	T	T
0.7666666805744171	0.3600000023841829	0.2682534075135834	F	F	F
0.7755582410892443	0.3548585433522521	0.4651455598528544	T	T	T
0.9333333472410814	0.3600000023841829	0.3658732962432083	F	F	F
0.1000000139077528	0.4600000023841844	0.3658732962432083	F	F	F
0.2666666805744171	0.4600000023841844	0.2682534075135834	F	F	F
0.2631667602674778	0.4646626966370930	0.4613194998516874	T	T	T
0.1000000139077528	0.5600000023841858	0.2682534075135834	F	F	F
0.0947145806354245	0.5635850032840559	0.4607913595703040	T	T	T
0.2666666805744171	0.5600000023841858	0.3658732962432083	F	F	F
0.4333333472410814	0.4600000023841844	0.3658732962432083	F	F	F
0.6000000139077528	0.4600000023841844	0.2682534075135834	F	F	F
0.5964458146351507	0.4646733282985282	0.4613245356076576	T	T	T
0.4333333472410814	0.5600000023841858	0.2682534075135834	F	F	F

0.4280296463099890	0.5636383257089242	0.4607908086838730	T	T	T
0.6000000139077528	0.5600000023841858	0.3658732962432083	F	F	F
0.7666666805744171	0.4600000023841844	0.3658732962432083	F	F	F
0.9333333472410814	0.4600000023841844	0.2682534075135834	F	F	F
0.9298299514042632	0.4646476918644183	0.4613929177536120	T	T	T
0.7666666805744171	0.5600000023841858	0.2682534075135834	F	F	F
0.7613645951290853	0.5635716879990067	0.4607502190911160	T	T	T
0.9333333472410814	0.5600000023841858	0.3658732962432083	F	F	F
0.1000000139077528	0.6600000023841872	0.3658732962432083	F	F	F
0.2666666805744171	0.6600000023841872	0.2682534075135834	F	F	F
0.2606188557476388	0.6615313425653928	0.4647830200451866	T	T	T
0.1000000139077528	0.7600000023841886	0.2682534075135834	F	F	F
0.0959818246627256	0.7589821947283868	0.4624165577332717	T	T	T
0.2666666805744171	0.7600000023841886	0.3658732962432083	F	F	F
0.4333333472410814	0.6600000023841872	0.3658732962432083	F	F	F
0.6000000139077528	0.6600000023841872	0.2682534075135834	F	F	F
0.5940162302202979	0.6615654567768771	0.4648740261177314	T	T	T
0.4333333472410814	0.7600000023841886	0.2682534075135834	F	F	F
0.4292486777283566	0.7589338434675811	0.4623974387490736	T	T	T
0.6000000139077528	0.7600000023841886	0.3658732962432083	F	F	F
0.7666666805744171	0.6600000023841872	0.3658732962432083	F	F	F
0.9333333472410814	0.6600000023841872	0.2682534075135834	F	F	F
0.9273407790295025	0.6615578997817685	0.4647817105347851	T	T	T
0.7666666805744171	0.7600000023841886	0.2682534075135834	F	F	F
0.7625493609547598	0.7589651012838194	0.4625119805484214	T	T	T
0.9333333472410814	0.7600000023841886	0.3658732962432083	F	F	F
0.1000000139077528	0.8600000023841829	0.3658732962432083	F	F	F
0.2666666805744171	0.8600000023841829	0.2682534075135834	F	F	F

0.2652558363584275	0.8587573335882448	0.4606035604845749	T	T	T
0.1000000139077528	0.9600000023841844	0.2682534075135834	F	F	F
0.0997623934695425	0.9597671304573087	0.4603907074681040	T	T	T
0.266666805744171	0.9600000023841844	0.3658732962432083	F	F	F
0.4333333472410814	0.8600000023841829	0.3658732962432083	F	F	F
0.6000000139077528	0.8600000023841829	0.2682534075135834	F	F	F
0.5984759218208912	0.8587616176035116	0.4605932298027583	T	T	T
0.4333333472410814	0.9600000023841844	0.2682534075135834	F	F	F
0.4330585645019503	0.9598313793824119	0.4603822510372430	T	T	T
0.6000000139077528	0.9600000023841844	0.3658732962432083	F	F	F
0.766666805744171	0.8600000023841829	0.3658732962432083	F	F	F
0.9333333472410814	0.8600000023841829	0.2682534075135834	F	F	F
0.9318426434373612	0.8586983826495446	0.4606213670558384	T	T	T
0.766666805744171	0.9600000023841844	0.2682534075135834	F	F	F
0.7665441034304118	0.9598219223144370	0.4603601945302569	T	T	T
0.9333333472410814	0.9600000023841844	0.3658732962432083	F	F	F
0.2201412300572571	0.5517762675909558	0.6418858793880116	T	T	T
0.3788836037938174	0.4350922975812646	0.5805454210800918	T	T	T
0.4000860552473798	0.6669470014216191	0.5719428513226271	T	T	T
0.5533549533655480	0.5515502414285427	0.6421968045336663	T	T	T
0.7123996354151855	0.4349902862861072	0.5804526189016798	T	T	T
0.7335526957921989	0.6668987695185175	0.5721580874593495	T	T	T
0.8868078269828934	0.5515845629336713	0.6420449124126006	T	T	T
0.0456287951868644	0.4348738148811072	0.5806654230723587	T	T	T
0.0669178159767530	0.6666679298819398	0.5719675848738813	T	T	T
0.2096765890133595	0.4059160265679010	0.5498034005988158	T	T	T
0.2313564065819640	0.6509744387020391	0.6079940240014055	T	T	T
0.3864981587900023	0.5144983575441346	0.6457272565776750	T	T	T

0.5428747173947039	0.4059654102939216	0.5496201273050551	T	T	T
0.5646151793428469	0.6505528332485732	0.6076437637956821	T	T	T
0.7198903963510958	0.5143814678107723	0.6457018484810165	T	T	T
0.8763659136602754	0.4056519323852426	0.5497371532252834	T	T	T
0.8979576086981861	0.6507546543032979	0.6079723497193067	T	T	T
0.0532844968034310	0.5143387177414807	0.6457383775638688	T	T	T

**Table S15.** Optimized fractional coordinates of the defective  $W_3^1(100)$  surface.

Cu Zn O

1.0000000000000000		
10.9172766490966993	0.0000000000000000	0.0000000000000000
0.0000000000000000	18.1954610818278013	0.0000000000000000
0.0000000000000000	0.0000000000000000	18.6390922163656008

Cu	Zn	O
90	9	8

Selective dynamics

Direct

0.1000000139077528	0.0600000023841858	0.3658732962432083	F	F	F
0.2666666805744171	0.0600000023841858	0.2682534075135834	F	F	F
0.2662298113939775	0.0601422329055013	0.4603779189032221	T	T	T
0.1000000139077528	0.1600000023841872	0.2682534075135834	F	F	F
0.0995383760856584	0.1598258577196800	0.4603407960557110	T	T	T
0.2666666805744171	0.1600000023841872	0.3658732962432083	F	F	F
0.4333333472410814	0.0600000023841858	0.3658732962432083	F	F	F
0.6000000139077528	0.0600000023841858	0.2682534075135834	F	F	F
0.6005238714733141	0.0597038258058223	0.4603056882358391	T	T	T
0.4333333472410814	0.1600000023841872	0.2682534075135834	F	F	F
0.4346619473703149	0.1584468639704770	0.4602728221219229	T	T	T
0.6000000139077528	0.1600000023841872	0.3658732962432083	F	F	F
0.7666666805744171	0.0600000023841858	0.3658732962432083	F	F	F
0.9333333472410814	0.0600000023841858	0.2682534075135834	F	F	F
0.9335867271525047	0.0599337488478356	0.4603748479076756	T	T	T
0.7666666805744171	0.1600000023841872	0.2682534075135834	F	F	F
0.7671378464183775	0.1594877031872704	0.4601608721671290	T	T	T
0.9333333472410814	0.1600000023841872	0.3658732962432083	F	F	F



0.1000000139077528	0.2600000023841886	0.3658732962432083	F	F	F
0.2666666805744171	0.2600000023841886	0.2682534075135834	F	F	F
0.2698749742743118	0.2559323060852904	0.4602579274635487	T	T	T
0.1000000139077528	0.3600000023841829	0.2682534075135834	F	F	F
0.1103335839906729	0.3549144261651553	0.4666417510034737	T	T	T
0.2666666805744171	0.3600000023841829	0.3658732962432083	F	F	F
0.4333333472410814	0.2600000023841886	0.3658732962432083	F	F	F
0.6000000139077528	0.2600000023841886	0.2682534075135834	F	F	F
0.6002528806111145	0.2582294999141333	0.4605815684985605	T	T	T
0.4333333472410814	0.3600000023841829	0.2682534075135834	F	F	F
0.4366051654096291	0.3571765258700920	0.4606363415601055	T	T	T
0.6000000139077528	0.3600000023841829	0.3658732962432083	F	F	F
0.7666666805744171	0.2600000023841886	0.3658732962432083	F	F	F
0.9333333472410814	0.2600000023841886	0.2682534075135834	F	F	F
0.9339946696865475	0.2594609538136619	0.4593758242992189	T	T	T
0.7666666805744171	0.3600000023841829	0.2682534075135834	F	F	F
0.7627428632937548	0.3583612951359300	0.4619882733843403	T	T	T
0.9333333472410814	0.3600000023841829	0.3658732962432083	F	F	F
0.1000000139077528	0.4600000023841844	0.3658732962432083	F	F	F
0.2666666805744171	0.4600000023841844	0.2682534075135834	F	F	F
0.2606625211981035	0.4658782859739602	0.4596614709161754	T	T	T
0.1000000139077528	0.5600000023841858	0.2682534075135834	F	F	F
0.0976825032738052	0.5649333267284263	0.4601057620670904	T	T	T
0.2666666805744171	0.5600000023841858	0.3658732962432083	F	F	F
0.4333333472410814	0.4600000023841844	0.3658732962432083	F	F	F
0.6000000139077528	0.4600000023841844	0.2682534075135834	F	F	F
0.5934215261816138	0.4574047782139124	0.4703815873854276	T	T	T
0.4333333472410814	0.5600000023841858	0.2682534075135834	F	F	F

0.4323736880354040	0.5602480158715556	0.4611272826533544	T	T	T
0.6000000139077528	0.5600000023841858	0.3658732962432083	F	F	F
0.7666666805744171	0.4600000023841844	0.3658732962432083	F	F	F
0.9333333472410814	0.4600000023841844	0.2682534075135834	F	F	F
0.9367782484465481	0.4625743248015529	0.4608455724800810	T	T	T
0.7666666805744171	0.5600000023841858	0.2682534075135834	F	F	F
0.7614375030830051	0.5595530053413802	0.4606298526642356	T	T	T
0.9333333472410814	0.5600000023841858	0.3658732962432083	F	F	F
0.1000000139077528	0.6600000023841872	0.3658732962432083	F	F	F
0.2666666805744171	0.6600000023841872	0.2682534075135834	F	F	F
0.2651074964977347	0.6612274573597894	0.4643267187474512	T	T	T
0.1000000139077528	0.7600000023841886	0.2682534075135834	F	F	F
0.0986055173881583	0.7595048133067689	0.4612680584576215	T	T	T
0.2666666805744171	0.7600000023841886	0.3658732962432083	F	F	F
0.4333333472410814	0.6600000023841872	0.3658732962432083	F	F	F
0.6000000139077528	0.6600000023841872	0.2682534075135834	F	F	F
0.5971367867785913	0.6613703141905655	0.4661142314469539	T	T	T
0.4333333472410814	0.7600000023841886	0.2682534075135834	F	F	F
0.4317471547317766	0.7605787718720566	0.4606833812830421	T	T	T
0.6000000139077528	0.7600000023841886	0.3658732962432083	F	F	F
0.7666666805744171	0.6600000023841872	0.3658732962432083	F	F	F
0.9333333472410814	0.6600000023841872	0.2682534075135834	F	F	F
0.9291365315724947	0.6609193501014987	0.4653692624190567	T	T	T
0.7666666805744171	0.7600000023841886	0.2682534075135834	F	F	F
0.7654274789123342	0.7600258146413583	0.4610235211533441	T	T	T
0.9333333472410814	0.7600000023841886	0.3658732962432083	F	F	F
0.1000000139077528	0.8600000023841829	0.3658732962432083	F	F	F
0.2666666805744171	0.8600000023841829	0.2682534075135834	F	F	F

0.2656984880797213	0.8591890140555003	0.4606453284820330	T	T	T
0.1000000139077528	0.9600000023841844	0.2682534075135834	F	F	F
0.0998582006320977	0.9598530048464761	0.4602996653517281	T	T	T
0.266666805744171	0.9600000023841844	0.3658732962432083	F	F	F
0.4333333472410814	0.8600000023841829	0.3658732962432083	F	F	F
0.6000000139077528	0.8600000023841829	0.2682534075135834	F	F	F
0.5994822311752320	0.8593221301086593	0.4606014446190974	T	T	T
0.4333333472410814	0.9600000023841844	0.2682534075135834	F	F	F
0.4327024095475656	0.9599587939317257	0.4603042673590897	T	T	T
0.6000000139077528	0.9600000023841844	0.3658732962432083	F	F	F
0.766666805744171	0.8600000023841829	0.3658732962432083	F	F	F
0.9333333472410814	0.8600000023841829	0.2682534075135834	F	F	F
0.9331866102897352	0.8590740377172275	0.4603140583588523	T	T	T
0.766666805744171	0.9600000023841844	0.2682534075135834	F	F	F
0.7671124734797619	0.9598691724819252	0.4603045718863617	T	T	T
0.9333333472410814	0.9600000023841844	0.3658732962432083	F	F	F
0.2518502043840102	0.5564696090052894	0.6401241739297353	T	T	T
0.4022582582653570	0.4430403689616806	0.5616439125384607	T	T	T
0.4181899613015408	0.6728105762820346	0.5679162630091222	T	T	T
0.5811583975061615	0.5519436413561425	0.6288614153227179	T	T	T
0.7626607207221937	0.4546291860226530	0.5622752593587224	T	T	T
0.7587234231315462	0.6676899848965543	0.5687287386790012	T	T	T
0.9196930047413648	0.5589537286640546	0.6437242770107058	T	T	T
0.0781622177030472	0.4393875305043750	0.5909570225302544	T	T	T
0.0906458005935733	0.6711166647883688	0.5694188964884449	T	T	T
0.2246559823390229	0.4042923869700766	0.5479872723612972	T	T	T
0.2552840623761812	0.6559057598710870	0.6071348063554456	T	T	T
0.4152871570217077	0.5147303904230062	0.6352328525625353	T	T	T

0.5862971342779705	0.6531572284032984	0.5973570180704362	T	T	T
0.7517707513566382	0.5238680054355912	0.6386665839692640	T	T	T
0.9235497572332124	0.4107090445412757	0.5546375785807991	T	T	T
0.9235679517198995	0.6567851177454441	0.6060851520073174	T	T	T
0.0854157387516022	0.5228296309071391	0.6509424395759669	T	T	T

**Table S16.** Optimized fractional coordinates of the perfect  $W_2^1(100)$  surface.

Cu Zn O

1.0000000000000000		
10.9172766490966993	0.0000000000000000	0.0000000000000000
0.0000000000000000	18.1954610818278013	0.0000000000000000
0.0000000000000000	0.0000000000000000	18.6390922163656008

Cu Zn O

90 6 6

Selective dynamics

Direct

0.1000000139077528	0.0600000023841858	0.3658732962432083	F	F	F
0.2666666805744171	0.0600000023841858	0.2682534075135834	F	F	F
0.2673751023138025	0.0597657131453708	0.4602486411119009	T	T	T
0.1000000139077528	0.1600000023841872	0.2682534075135834	F	F	F
0.1011206343325735	0.1592019793549700	0.4605354107847294	T	T	T
0.2666666805744171	0.1600000023841872	0.3658732962432083	F	F	F
0.4333333472410814	0.0600000023841858	0.3658732962432083	F	F	F
0.6000000139077528	0.0600000023841858	0.2682534075135834	F	F	F
0.6007203220782455	0.0597566022534258	0.4602495038727631	T	T	T
0.4333333472410814	0.1600000023841872	0.2682534075135834	F	F	F
0.4344770843596604	0.1591860620005087	0.4605341851317363	T	T	T
0.6000000139077528	0.1600000023841872	0.3658732962432083	F	F	F
0.7666666805744171	0.0600000023841858	0.3658732962432083	F	F	F
0.9333333472410814	0.0600000023841858	0.2682534075135834	F	F	F
0.9340748382189498	0.0597626717138165	0.4602499927705002	T	T	T
0.7666666805744171	0.1600000023841872	0.2682534075135834	F	F	F
0.7678110781498551	0.1591909535081034	0.4605321119238356	T	T	T
0.9333333472410814	0.1600000023841872	0.3658732962432083	F	F	F

0.1000000139077528	0.2600000023841886	0.3658732962432083	F	F	F
0.2666666805744171	0.2600000023841886	0.2682534075135834	F	F	F
0.2698252960346399	0.2568975906364502	0.4603381518352058	T	T	T
0.1000000139077528	0.3600000023841829	0.2682534075135834	F	F	F
0.1077578032912821	0.3555117860402771	0.4645421556798655	T	T	T
0.2666666805744171	0.3600000023841829	0.3658732962432083	F	F	F
0.4333333472410814	0.2600000023841886	0.3658732962432083	F	F	F
0.6000000139077528	0.2600000023841886	0.2682534075135834	F	F	F
0.6031743277839837	0.2568983552545134	0.4603482694087631	T	T	T
0.4333333472410814	0.3600000023841829	0.2682534075135834	F	F	F
0.4410650416860126	0.3555064549347587	0.4645220833860489	T	T	T
0.6000000139077528	0.3600000023841829	0.3658732962432083	F	F	F
0.7666666805744171	0.2600000023841886	0.3658732962432083	F	F	F
0.9333333472410814	0.2600000023841886	0.2682534075135834	F	F	F
0.9365041302071467	0.2569165838456587	0.4603430942573592	T	T	T
0.7666666805744171	0.3600000023841829	0.2682534075135834	F	F	F
0.7743256795415346	0.3555274353689423	0.4645147649549692	T	T	T
0.9333333472410814	0.3600000023841829	0.3658732962432083	F	F	F
0.1000000139077528	0.4600000023841844	0.3658732962432083	F	F	F
0.2666666805744171	0.4600000023841844	0.2682534075135834	F	F	F
0.2623903390856391	0.4627060236505234	0.4603356985870487	T	T	T
0.1000000139077528	0.5600000023841858	0.2682534075135834	F	F	F
0.0934106365060378	0.5650617424649449	0.4634931582025545	T	T	T
0.2666666805744171	0.5600000023841858	0.3658732962432083	F	F	F
0.4333333472410814	0.4600000023841844	0.3658732962432083	F	F	F
0.6000000139077528	0.4600000023841844	0.2682534075135834	F	F	F
0.5956579375672061	0.4626993163315047	0.4604165015430863	T	T	T
0.4333333472410814	0.5600000023841858	0.2682534075135834	F	F	F

0.4267991334598607	0.5650673573650952	0.4635100349010560	T	T	T
0.6000000139077528	0.5600000023841858	0.3658732962432083	F	F	F
0.7666666805744171	0.4600000023841844	0.3658732962432083	F	F	F
0.9333333472410814	0.4600000023841844	0.2682534075135834	F	F	F
0.9290617020086817	0.4627048280344501	0.4603302716573019	T	T	T
0.7666666805744171	0.5600000023841858	0.2682534075135834	F	F	F
0.7601598243155214	0.5649817894424941	0.4633747704966297	T	T	T
0.9333333472410814	0.5600000023841858	0.3658732962432083	F	F	F
0.1000000139077528	0.6600000023841872	0.3658732962432083	F	F	F
0.2666666805744171	0.6600000023841872	0.2682534075135834	F	F	F
0.2617975670159304	0.6613249322118873	0.4632964930918056	T	T	T
0.1000000139077528	0.7600000023841886	0.2682534075135834	F	F	F
0.0975706249270672	0.7593287202868495	0.4609319150547022	T	T	T
0.2666666805744171	0.7600000023841886	0.3658732962432083	F	F	F
0.4333333472410814	0.6600000023841872	0.3658732962432083	F	F	F
0.6000000139077528	0.6600000023841872	0.2682534075135834	F	F	F
0.5951754078387855	0.6612806059762190	0.4633322920243192	T	T	T
0.4333333472410814	0.7600000023841886	0.2682534075135834	F	F	F
0.4310092782558647	0.7593273573351399	0.4609228812051964	T	T	T
0.6000000139077528	0.7600000023841886	0.3658732962432083	F	F	F
0.7666666805744171	0.6600000023841872	0.3658732962432083	F	F	F
0.9333333472410814	0.6600000023841872	0.2682534075135834	F	F	F
0.9283908426407094	0.6612951447748923	0.4633123527932763	T	T	T
0.7666666805744171	0.7600000023841886	0.2682534075135834	F	F	F
0.7642637225129190	0.7593639797152293	0.4609352371200050	T	T	T
0.9333333472410814	0.7600000023841886	0.3658732962432083	F	F	F
0.1000000139077528	0.8600000023841829	0.3658732962432083	F	F	F
0.2666666805744171	0.8600000023841829	0.2682534075135834	F	F	F

0.2658323360422767	0.8597904468306127	0.4604330915611196	T	T	T
0.1000000139077528	0.9600000023841844	0.2682534075135834	F	F	F
0.1002091461347933	0.9599735375746499	0.4605323159724383	T	T	T
0.2666666805744171	0.9600000023841844	0.3658732962432083	F	F	F
0.4333333472410814	0.8600000023841829	0.3658732962432083	F	F	F
0.6000000139077528	0.8600000023841829	0.2682534075135834	F	F	F
0.5991728275979966	0.8598191114125593	0.4604333877810512	T	T	T
0.4333333472410814	0.9600000023841844	0.2682534075135834	F	F	F
0.4335042735387087	0.9599691750308436	0.4605310182430603	T	T	T
0.6000000139077528	0.9600000023841844	0.3658732962432083	F	F	F
0.7666666805744171	0.8600000023841829	0.3658732962432083	F	F	F
0.9333333472410814	0.8600000023841829	0.2682534075135834	F	F	F
0.9325180609982011	0.8598096036299400	0.4604368247099010	T	T	T
0.7666666805744171	0.9600000023841844	0.2682534075135834	F	F	F
0.7668851934305206	0.9599715748509009	0.4605346234128794	T	T	T
0.9333333472410814	0.9600000023841844	0.3658732962432083	F	F	F
0.2323715448327653	0.5726239302307097	0.5714786827209862	T	T	T
0.3878924146997292	0.4414794432062411	0.5780226277337764	T	T	T
0.5658247833194145	0.5726291664053641	0.5715580260654611	T	T	T
0.7211359746823857	0.4416732117372943	0.5780142182090325	T	T	T
0.8989004634002636	0.5727701693834434	0.5715554618098716	T	T	T
0.0544107703058234	0.4416014915981388	0.5779715463065309	T	T	T
0.2188369373613205	0.4092368404671983	0.5549076724335660	T	T	T
0.3970337938205944	0.5448750318630752	0.6004620294100291	T	T	T
0.5522770338435934	0.4089657924772961	0.5548655565871075	T	T	T
0.7304351487252387	0.5449249580440897	0.6008018723658943	T	T	T
0.8854965572231174	0.4091144204955756	0.5547755768818348	T	T	T
0.0636899933200796	0.5450808526176947	0.6002880076668436	T	T	T



**Table S17.** Optimized fractional coordinates of the perfect  $W_3^1(211)$  surface.

Cu Zn O

1.0000000000000000		
10.9172766490966993	-10.9172766490966993	-10.9172766490966993
0.0000000000000000	7.2781844327311198	-7.2781844327311198
17.7060870384642008	8.8530435192321200	8.8530435192321200

Cu	Zn	O
120	9	9

Selective dynamics

Direct

0.0615385612039887	0.0609289614114417	0.2646699365902521	F	F	F
0.2837607834262101	0.3109289614114417	0.3331791863275555	F	F	F
0.1729510965034736	0.0611805193006888	0.4021409258028111	T	T	T
0.0632355173663174	0.3113927790534363	0.4722315315183083	T	T	T
0.2794812981944932	0.0602465480663638	0.5308404046242785	T	T	T
0.2837607834262101	0.1859289614114417	0.2304153117216003	F	F	F
0.1726496723150959	0.4359289614114417	0.2989245614589038	F	F	F
0.0633195184308541	0.1864548207359429	0.3672607095947436	T	T	T
0.2859540188840260	0.4362424682498436	0.4348580547220538	T	T	T
0.1719439241746739	0.1874271557463341	0.5039678943906064	T	T	T
0.2837607834262101	0.4359289614114417	0.2304153117216003	F	F	F
0.1726496723150959	0.1859289614114417	0.2989245614589038	F	F	F
0.0632910454288724	0.4360520758863059	0.3672454686631725	T	T	T
0.2851997855518975	0.1876232967282966	0.4337202531773080	T	T	T
0.1736105455822868	0.4361377761158740	0.5043412766664576	T	T	T
0.0615385612039887	0.3109289614114417	0.2646699365902521	F	F	F
0.2837607834262101	0.0609289614114417	0.3331791863275555	F	F	F
0.1732929942976481	0.3113618231284752	0.4022220452396588	T	T	T

0.0625705486014838	0.0613632344866626	0.4720266586352555	T	T	T
0.2829707687599217	0.3098564734847448	0.5338264996832518	T	T	T
0.3948718945373244	0.0609289614114417	0.2646699365902521	F	F	F
0.6170941167595458	0.3109289614114417	0.3331791863275555	F	F	F
0.5057681182895761	0.0605705842611550	0.4017456588603887	T	T	T
0.3965605630502665	0.3127067800527698	0.4731859389999211	T	T	T
0.6156871089507013	0.0537407973466384	0.5306102308780798	T	T	T
0.6170941167595458	0.1859289614114417	0.2304153117216003	F	F	F
0.5059830056484316	0.4359289614114417	0.2989245614589038	F	F	F
0.3958565086846439	0.1870561974655964	0.3669816769380217	T	T	T
0.6201585221445185	0.4355505099077930	0.4377506989173380	T	T	T
0.5051634548460658	0.1844584819556775	0.5022784316457665	T	T	T
0.6170941167595458	0.4359289614114417	0.2304153117216003	F	F	F
0.5059830056484316	0.1859289614114417	0.2989245614589038	F	F	F
0.3956622075591433	0.4358821767852817	0.3673902416539766	T	T	T
0.6192656318514266	0.1870056832016098	0.4354619143123961	T	T	T
0.5091352236129654	0.4353179352958350	0.5019905984078705	T	T	T
0.3948718945373244	0.3109289614114417	0.2646699365902521	F	F	F
0.6170941167595458	0.0609289614114417	0.3331791863275555	F	F	F
0.5061771502390510	0.3109023928496635	0.4012058531531733	T	T	T
0.3936309240845457	0.0634572179504797	0.4702638305029255	T	T	T
0.6195131989213434	0.3009830515555384	0.5377709250174575	T	T	T
0.7282052278706530	0.0609289614114417	0.2646699365902521	F	F	F
0.9504274500928744	0.3109289614114417	0.3331791863275555	F	F	F
0.8410993354117656	0.0610719301990245	0.4010506591549176	T	T	T
0.7307709628246277	0.3106144332110671	0.4688695015850126	T	T	T
0.9476301149215562	0.0606372712316368	0.5321971896996439	T	T	T
0.9504274500928744	0.1859289614114417	0.2304153117216003	F	F	F

0.8393163389817673	0.4359289614114417	0.2989245614589038	F	F	F
0.7297774808415218	0.1869371095477982	0.3661215879247852	T	T	T
0.9543346948397995	0.4360810332199657	0.4344433278385062	T	T	T
0.8398462121567212	0.1855761294595545	0.5021939619018704	T	T	T
0.9504274500928744	0.4359289614114417	0.2304153117216003	F	F	F
0.8393163389817673	0.1859289614114417	0.2989245614589038	F	F	F
0.7293279323283279	0.4362692107624268	0.3666045852533234	T	T	T
0.9542098591323043	0.1864020419994152	0.4344118918513761	T	T	T
0.8401077780837878	0.4357897971666032	0.5023925799913613	T	T	T
0.7282052278706530	0.3109289614114417	0.2646699365902521	F	F	F
0.9504274500928744	0.0609289614114417	0.3331791863275555	F	F	F
0.8409433255438873	0.3110234709788998	0.4012806856347878	T	T	T
0.7303173539937325	0.0606084174657313	0.4678907531301805	T	T	T
0.9478635707774121	0.3107213200676943	0.5322833102451544	T	T	T
0.0615385612039887	0.5609289614114417	0.2646699365902521	F	F	F
0.2837607834262101	0.8109289614114417	0.3331791863275555	F	F	F
0.1732219239157672	0.5604325123208953	0.4021878504334397	T	T	T
0.0626414089828535	0.8103070672300007	0.4719964303305060	T	T	T
0.2834193262651092	0.5619998068704063	0.5341175639790452	T	T	T
0.2837607834262101	0.6859289614114417	0.2304153117216003	F	F	F
0.1726496723150959	0.9359289614114417	0.2989245614589038	F	F	F
0.0632666612119760	0.6857527714894247	0.3672591258345246	T	T	T
0.2847967214649447	0.9359436357779652	0.4328186822744042	T	T	T
0.1721552493608486	0.6846314289437618	0.5040594838837089	T	T	T
0.2837607834262101	0.9359289614114417	0.2304153117216003	F	F	F
0.1726496723150959	0.6859289614114417	0.2989245614589038	F	F	F
0.0633044742243612	0.9361423055664981	0.3671965763940660	T	T	T
0.2850868919480657	0.6844836645596973	0.4339291818413648	T	T	T

0.1705921695657701	0.9361433250612498	0.5035701602050506	T	T	T
0.0615385612039887	0.8109289614114417	0.2646699365902521	F	F	F
0.2837607834262101	0.5609289614114417	0.3331791863275555	F	F	F
0.1728924092576946	0.8105371356665628	0.4022217035109358	T	T	T
0.0632882698679052	0.5604260721462130	0.4722683980356671	T	T	T
0.2795465385986571	0.8119821724768010	0.5311087168652213	T	T	T
0.3948718945373244	0.5609289614114417	0.2646699365902521	F	F	F
0.6170941167595458	0.8109289614114417	0.3331791863275555	F	F	F
0.5062400625210136	0.5601227674168122	0.4011611762722908	T	T	T
0.3936897938852257	0.8080839521302311	0.4704223731582226	T	T	T
0.6194763247267129	0.5685524174813765	0.5376075026128677	T	T	T
0.6170941167595458	0.6859289614114417	0.2304153117216003	F	F	F
0.5059830056484316	0.9359289614114417	0.2989245614589038	F	F	F
0.3957434155251604	0.6845309794278516	0.3672097976831999	T	T	T
0.6188774577234700	0.9356312334845165	0.4320409352264527	T	T	T
0.5055967480482265	0.6866950836080220	0.5018592246041156	T	T	T
0.6170941167595458	0.9359289614114417	0.2304153117216003	F	F	F
0.5059830056484316	0.6859289614114417	0.2989245614589038	F	F	F
0.3957146733621773	0.9358107341607683	0.3669182184824200	T	T	T
0.6192797089811167	0.6843336504735268	0.4354812760628171	T	T	T
0.4999318960547557	0.9356861846888065	0.5030137647264648	T	T	T
0.3948718945373244	0.8109289614114417	0.2646699365902521	F	F	F
0.6170941167595458	0.5609289614114417	0.3331791863275555	F	F	F
0.5057009767137791	0.8107561757407804	0.4015541451774717	T	T	T
0.3967917454295335	0.5589604946826936	0.4734359414041687	T	T	T
0.6156462168805561	0.8167846476328220	0.5307351205743056	T	T	T
0.7282052278706530	0.5609289614114417	0.2646699365902521	F	F	F
0.9504274500928744	0.8109289614114417	0.3331791863275555	F	F	F

0.8409333197294997	0.5608211047847631	0.4013330196736227	T	T	T
0.7303615987919840	0.8108981572841142	0.4679598604666820	T	T	T
0.9478443602435945	0.5608027196218085	0.5322701105652885	T	T	T
0.9504274500928744	0.6859289614114417	0.2304153117216003	F	F	F
0.8393163389817673	0.9359289614114417	0.2989245614589038	F	F	F
0.7297299809214477	0.6855318855050946	0.3661770180171475	T	T	T
0.9541228825578999	0.9360272965838657	0.4342694661702457	T	T	T
0.8399365404539383	0.6862003485501035	0.5022828119636036	T	T	T
0.9504274500928744	0.9359289614114417	0.2304153117216003	F	F	F
0.8393163389817673	0.6859289614114417	0.2989245614589038	F	F	F
0.7304727964989765	0.9361638588186914	0.3658454793012518	T	T	T
0.9542146255741185	0.6857006720806862	0.4343862982695324	T	T	T
0.8397665644115615	0.9358871869578645	0.5020011577084303	T	T	T
0.7282052278706530	0.8109289614114417	0.2646699365902521	F	F	F
0.9504274500928744	0.5609289614114417	0.3331791863275555	F	F	F
0.8410842799861163	0.8106699958056960	0.4010936029011042	T	T	T
0.7308229470733170	0.5610115193354058	0.4688949303219852	T	T	T
0.9477214464187628	0.8108186813855861	0.5321965238126926	T	T	T
0.4804171151730368	0.2682015355850826	0.6846980283109176	T	T	T
0.6033127608124789	0.4328134215510261	0.6530553622028520	T	T	T
0.3941541331828039	0.4324028393970945	0.5836099690835215	T	T	T
0.4808313164189796	0.5975006038324520	0.6849017654653899	T	T	T
0.5991371086568644	0.7624307010060577	0.6452458501190044	T	T	T
0.3984646484978324	0.7606617049341146	0.5850822012472413	T	T	T
0.4804551618695988	0.9321373479661602	0.6821701881187137	T	T	T
0.5987204074814333	0.1028694966084853	0.6453288931453138	T	T	T
0.3989418664965853	0.1022921828879759	0.5858245496864053	T	T	T
0.6337472200389105	0.2687007318154174	0.6242972214708534	T	T	T

0.4072536283170565	0.2680661541733447	0.6247687459976401	T	T	T
0.5200250545262750	0.4325521126114985	0.7019346966474388	T	T	T
0.6341515383141977	0.5966235847978087	0.6243106296648048	T	T	T
0.4077088275555839	0.5961961147174603	0.6249280363514178	T	T	T
0.5195415372928283	0.7661121495994185	0.6975657195686671	T	T	T
0.6206113959749345	0.9330454079868146	0.6080837130672280	T	T	T
0.4089580536961221	0.9313261643226599	0.6209425801328828	T	T	T
0.5188054832667033	0.0990400636199398	0.6972090181961365	T	T	T

**Table S18.** Optimized fractional coordinates of the defective  $W_3^1(211)$  surface.

Cu Zn O

1.0000000000000000		
18.9092778365208005	0.0000000000000000	-0.0000000000000198
0.0000000000000000	10.2929071342210996	0.0000000000000000
0.0000000000000000	0.0000000000000000	21.6854392927720987

Cu Zn O  
120 9 8

Selective dynamics

Direct

0.0615385612039887	0.0609289614114417	0.2646699365902521	F	F	F
0.2837607834262101	0.3109289614114417	0.3331791863275555	F	F	F
0.1732704361826446	0.0613587169916729	0.4022222166273787	T	T	T
0.0636662685061342	0.3118031257386776	0.4720565370705457	T	T	T
0.2797078028813230	0.0603509968514746	0.5305123919870830	T	T	T
0.2837607834262101	0.1859289614114417	0.2304153117216003	F	F	F
0.1726496723150959	0.4359289614114417	0.2989245614589038	F	F	F
0.0635600899145419	0.1864027109376733	0.3672131787613651	T	T	T
0.2871995179330224	0.4371533104958889	0.4352332095287416	T	T	T
0.1721899664251961	0.1876331999919504	0.5037984191473897	T	T	T
0.2837607834262101	0.4359289614114417	0.2304153117216003	F	F	F
0.1726496723150959	0.1859289614114417	0.2989245614589038	F	F	F
0.0634944664153523	0.4362642849256383	0.3672378507910920	T	T	T
0.2859187804575519	0.1880412722704892	0.4335354328562901	T	T	T
0.1742285603377515	0.4366345735747199	0.5045321803976165	T	T	T
0.0615385612039887	0.3109289614114417	0.2646699365902521	F	F	F
0.2837607834262101	0.0609289614114417	0.3331791863275555	F	F	F
0.1737710538340965	0.3118512387285013	0.4023440927860780	T	T	T

0.0629594905361104	0.0614902422659168	0.4717873518407043	T	T	T
0.2830203192795424	0.3095220466949468	0.5336638778288965	T	T	T
0.3948718945373244	0.0609289614114417	0.2646699365902521	F	F	F
0.6170941167595458	0.3109289614114417	0.3331791863275555	F	F	F
0.5062455842164435	0.0613293982737143	0.4023107349090848	T	T	T
0.3972664582284933	0.3144512287122605	0.4738510817700146	T	T	T
0.6165579274605912	0.0571248615651473	0.5311788387185289	T	T	T
0.6170941167595458	0.1859289614114417	0.2304153117216003	F	F	F
0.5059830056484316	0.4359289614114417	0.2989245614589038	F	F	F
0.3966666291857970	0.1881048321584913	0.3673977386772007	T	T	T
0.6201106312557464	0.4363899600458502	0.4371256637300654	T	T	T
0.5060961413749078	0.1865403395279108	0.5025635411040130	T	T	T
0.6170941167595458	0.4359289614114417	0.2304153117216003	F	F	F
0.5059830056484316	0.1859289614114417	0.2989245614589038	F	F	F
0.3964880222931876	0.4369823753813708	0.3677721883221071	T	T	T
0.6197853666353110	0.1872149847475187	0.4350973500248008	T	T	T
0.5100094012053370	0.4369444791834343	0.5057429417680643	T	T	T
0.3948718945373244	0.3109289614114417	0.2646699365902521	F	F	F
0.6170941167595458	0.0609289614114417	0.3331791863275555	F	F	F
0.5069229207198032	0.3132663002172774	0.4022873097450455	T	T	T
0.3944330004167484	0.0640832617229884	0.4709775341491642	T	T	T
0.6233765024536554	0.3080694758746482	0.5353984678314672	T	T	T
0.7282052278706530	0.0609289614114417	0.2646699365902521	F	F	F
0.9504274500928744	0.3109289614114417	0.3331791863275555	F	F	F
0.8409264497797309	0.0610391683527380	0.4010746356069479	T	T	T
0.7322773421783023	0.3111899213732711	0.4682440098943997	T	T	T
0.9485521808581040	0.0608326288596501	0.5322885720013933	T	T	T
0.9504274500928744	0.1859289614114417	0.2304153117216003	F	F	F



0.8393163389817673	0.4359289614114417	0.2989245614589038	F	F	F
0.7297696399039044	0.1867037671456570	0.3659255345678194	T	T	T
0.9543244417681318	0.4362727296704168	0.4343599956162879	T	T	T
0.8405098774196454	0.1856936414451796	0.5026135803929573	T	T	T
0.9504274500928744	0.4359289614114417	0.2304153117216003	F	F	F
0.8393163389817673	0.1859289614114417	0.2989245614589038	F	F	F
0.7294579758616450	0.4368317571115409	0.3667788605973357	T	T	T
0.9544270106422184	0.1864241820402887	0.4343312260416053	T	T	T
0.8406028895693497	0.4364349837772908	0.5030329584893569	T	T	T
0.7282052278706530	0.3109289614114417	0.2646699365902521	F	F	F
0.9504274500928744	0.0609289614114417	0.3331791863275555	F	F	F
0.8411547601335126	0.3110217601471026	0.4011493121344177	T	T	T
0.7309261873377140	0.0604316917947588	0.4681810126478176	T	T	T
0.9485635894815659	0.3106744880853465	0.5322065070337799	T	T	T
0.0615385612039887	0.5609289614114417	0.2646699365902521	F	F	F
0.2837607834262101	0.8109289614114417	0.3331791863275555	F	F	F
0.1738804593414532	0.5606471211779060	0.4024077373327201	T	T	T
0.0631110194629238	0.8101111454438814	0.4718398373617059	T	T	T
0.2840994564628038	0.5624354212460480	0.5349633323023124	T	T	T
0.2837607834262101	0.6859289614114417	0.2304153117216003	F	F	F
0.1726496723150959	0.9359289614114417	0.2989245614589038	F	F	F
0.0634930577376970	0.6858665350941773	0.3672418950036107	T	T	T
0.2857014758559051	0.9360840879410577	0.4326381711963065	T	T	T
0.1727879944050007	0.6845653000988819	0.5042033203967117	T	T	T
0.2837607834262101	0.9359289614114417	0.2304153117216003	F	F	F
0.1726496723150959	0.6859289614114417	0.2989245614589038	F	F	F
0.0635938835346044	0.9360713839983721	0.3671815635759942	T	T	T
0.2866303887372712	0.6845022443511362	0.4342903709905653	T	T	T

0.1709171739914460	0.9360969306545533	0.5034493999441810	T	T	T
0.0615385612039887	0.8109289614114417	0.2646699365902521	F	F	F
0.2837607834262101	0.5609289614114417	0.3331791863275555	F	F	F
0.1735173326582366	0.8104163391454916	0.4024054189699358	T	T	T
0.0637127545985008	0.5604015269803684	0.4720924187587435	T	T	T
0.2798305023118791	0.8125110957947689	0.5308443966977653	T	T	T
0.3948718945373244	0.5609289614114417	0.2646699365902521	F	F	F
0.6170941167595458	0.8109289614114417	0.3331791863275555	F	F	F
0.5070910429552711	0.5618172145070632	0.4028159160289708	T	T	T
0.3951471972018076	0.8092860606254511	0.4715704568604373	T	T	T
0.6157606692340563	0.5718813414694081	0.5401692957589811	T	T	T
0.6170941167595458	0.6859289614114417	0.2304153117216003	F	F	F
0.5059830056484316	0.9359289614114417	0.2989245614589038	F	F	F
0.3965256579628422	0.6853944185125650	0.3675070796987682	T	T	T
0.6195785846596185	0.9375576624563754	0.4317905567309816	T	T	T
0.5074735228533295	0.6915705417220802	0.5064873353037519	T	T	T
0.6170941167595458	0.9359289614114417	0.2304153117216003	F	F	F
0.5059830056484316	0.6859289614114417	0.2989245614589038	F	F	F
0.3966320183843866	0.9361424585916543	0.3673637320818873	T	T	T
0.6201849076150071	0.6859595373051218	0.4348113640020246	T	T	T
0.5023089755252181	0.9377070395308199	0.5038613296556221	T	T	T
0.3948718945373244	0.8109289614114417	0.2646699365902521	F	F	F
0.6170941167595458	0.5609289614114417	0.3331791863275555	F	F	F
0.5067240960061703	0.8106766307265497	0.4027527372259749	T	T	T
0.3986245632974117	0.5607174757634745	0.4749991887975933	T	T	T
0.6253878262472178	0.8169944318331817	0.5286516593747514	T	T	T
0.7282052278706530	0.5609289614114417	0.2646699365902521	F	F	F
0.9504274500928744	0.8109289614114417	0.3331791863275555	F	F	F

0.8401727303594188	0.5608479183605224	0.4017350087254245	T	T	T
0.7337634037704379	0.8100629638159863	0.4669306620008072	T	T	T
0.9490124495682299	0.5607078121985368	0.5324482016294930	T	T	T
0.9504274500928744	0.6859289614114417	0.2304153117216003	F	F	F
0.8393163389817673	0.9359289614114417	0.2989245614589038	F	F	F
0.7301122253360383	0.6846186583053009	0.3661080670322033	T	T	T
0.9545230210627634	0.9360518871060076	0.4342498059824448	T	T	T
0.8408479344141361	0.6853820679214507	0.5030394020574199	T	T	T
0.9504274500928744	0.9359289614114417	0.2304153117216003	F	F	F
0.8393163389817673	0.6859289614114417	0.2989245614589038	F	F	F
0.7305193764607778	0.9359629405097332	0.3655239466971593	T	T	T
0.9544120177976329	0.6853654908681990	0.4343485715728071	T	T	T
0.8408354620961482	0.9361023124500335	0.5023487707554518	T	T	T
0.7282052278706530	0.8109289614114417	0.2646699365902521	F	F	F
0.9504274500928744	0.5609289614114417	0.3331791863275555	F	F	F
0.8419572409638203	0.8106393998579372	0.4008098214802206	T	T	T
0.7299732588685131	0.5614410709162150	0.4718620167257846	T	T	T
0.9486476072699381	0.8107774269874470	0.5322149957594925	T	T	T
0.4802125656939858	0.2619740077861678	0.6854461525903053	T	T	T
0.5874425953416622	0.4288958282063586	0.6313683145104194	T	T	T
0.3933384310452600	0.4286189573251801	0.5847648989600788	T	T	T
0.4747928023085073	0.5925397509783263	0.6832050920519214	T	T	T
0.5798276510078006	0.7504704596923710	0.6237579245476053	T	T	T
0.3965616212632162	0.7593165487965845	0.5867939850741725	T	T	T
0.4822149317385508	0.9301194194147542	0.6822528497089662	T	T	T
0.5990890918251187	0.1012423758277096	0.6481429048547154	T	T	T
0.3984982368149066	0.0989122290103826	0.5864657501252447	T	T	T
0.6327241379585899	0.2633507096787320	0.6219431026805445	T	T	T

0.4065579058250781	0.2640665790446191	0.6260786234250476	T	T	T
0.5195245837700659	0.4312936583366749	0.6950967792652589	T	T	T
0.3979579639335792	0.5934553421496240	0.6272337398221608	T	T	T
0.5187941758962334	0.7578973801892405	0.6913028097645478	T	T	T
0.6140971083708096	0.9376853589890194	0.6053483145713369	T	T	T
0.4084009456062700	0.9293963832883193	0.6230169211351692	T	T	T
0.5195171192944256	0.0956067704002814	0.7008998669311129	T	T	T

**Table S19.** Optimized fractional coordinates of the perfect  $W_2^1(211)$  surface.

Cu Zn O

1.0000000000000000		
10.9172766490966993	-10.9172766490966993	-10.9172766490966993
0.0000000000000000	7.2781844327311198	-7.2781844327311198
17.7060870384642008	8.8530435192321200	8.8530435192321200

Cu	Zn	O
120	6	6

Selective dynamics

Direct

0.0580927071224764	0.0659547220969969	0.2648195863595220	F	F	F
0.2803149293446978	0.3159547220969969	0.3333288360968183	F	F	F
0.1700143137403800	0.0654231244270984	0.4025656698257799	T	T	T
0.0600638170098911	0.3151326875260517	0.4724324563157222	T	T	T
0.2825137878474278	0.0657914772021795	0.5356546716963998	T	T	T
0.2803149293446978	0.1909547220969969	0.2305649614908702	F	F	F
0.1692038182335835	0.4409547220969969	0.2990742112281666	F	F	F
0.0598878989836121	0.1905187664785196	0.3675456430910918	T	T	T
0.2811593557621745	0.4403187709635156	0.4333678289519747	T	T	T
0.1707602633451957	0.1896410973398616	0.5044200013860064	T	T	T
0.2803149293446978	0.4409547220969969	0.2305649614908702	F	F	F
0.1692038182335835	0.1909547220969969	0.2990742112281666	F	F	F
0.0597939803871249	0.4406398353135444	0.3674646909021262	T	T	T
0.2816444313943843	0.1892308224589928	0.4343534248512038	T	T	T
0.1696925837912385	0.4404464057146001	0.5039101131195801	T	T	T
0.0580927071224764	0.3159547220969969	0.2648195863595220	F	F	F
0.2803149293446978	0.0659547220969969	0.3333288360968183	F	F	F
0.1696923720486086	0.3152721145049974	0.4024715136304137	T	T	T

0.0606947437828076	0.0655428855122133	0.4725213955848795	T	T	T
0.2798594892467379	0.3158632043647528	0.5327538075697145	T	T	T
0.3914260404558050	0.0659547220969969	0.2648195863595220	F	F	F
0.6136482626780264	0.3159547220969969	0.3333288360968183	F	F	F
0.5030722701278025	0.0650466521217192	0.3997691798417869	T	T	T
0.3907167519102476	0.3126713779068874	0.4692672928772355	T	T	T
0.6174652828798669	0.0582834462067215	0.5313765463888446	T	T	T
0.6136482626780264	0.1909547220969969	0.2305649614908702	F	F	F
0.5025371515669192	0.4409547220969969	0.2990742112281666	F	F	F
0.3920253614674194	0.1895361868092136	0.3667750304495613	T	T	T
0.6145974026260215	0.4398521449991990	0.4398693216772439	T	T	T
0.5027444623253994	0.1891420289100856	0.4981285806881149	T	T	T
0.6136482626780264	0.4409547220969969	0.2305649614908702	F	F	F
0.5025371515669192	0.1909547220969969	0.2990742112281666	F	F	F
0.3919382749935891	0.4403408991056064	0.3666229595491245	T	T	T
0.6168746443088415	0.1906051624034758	0.4355991210623060	T	T	T
0.4982099790299775	0.4391998519934793	0.5032468066768332	T	T	T
0.3914260404558050	0.3159547220969969	0.2648195863595220	F	F	F
0.6136482626780264	0.0659547220969969	0.3333288360968183	F	F	F
0.5027199963551474	0.3167958464549551	0.4006326887827237	T	T	T
0.3925679513352606	0.0637153680540787	0.4723058020592691	T	T	T
0.6114459022821592	0.3049978969661044	0.5390771508575660	T	T	T
0.7247593737891407	0.0659547220969969	0.2648195863595220	F	F	F
0.9469815960113621	0.3159547220969969	0.3333288360968183	F	F	F
0.8379753958036901	0.0660059971247354	0.4010590785152258	T	T	T
0.7253480040620816	0.3150861222302109	0.4716510732682839	T	T	T
0.9449472085384167	0.0658737665106879	0.5322722861163047	T	T	T
0.9469815960113621	0.1909547220969969	0.2305649614908702	F	F	F

0.8358704849002550	0.4409547220969969	0.2990742112281666	F	F	F
0.7267214988595413	0.1918607569097788	0.3664979427066848	T	T	T
0.9506514369423174	0.4405948961275075	0.4343347518128075	T	T	T
0.8367517284729061	0.1904163123921855	0.5023418346228450	T	T	T
0.9469815960113621	0.4409547220969969	0.2305649614908702	F	F	F
0.8358704849002550	0.1909547220969969	0.2990742112281666	F	F	F
0.7253490540279229	0.4407943267624868	0.3679883843336346	T	T	T
0.9509803506451812	0.1906486291030233	0.4344660675376522	T	T	T
0.8359646882071602	0.4405380250457535	0.5023928178405563	T	T	T
0.7247593737891407	0.3159547220969969	0.2648195863595220	F	F	F
0.9469815960113621	0.0659547220969969	0.3333288360968183	F	F	F
0.8367190267191801	0.3159467127217196	0.4016387014076470	T	T	T
0.7280376789757342	0.0653586481141468	0.4685035366401672	T	T	T
0.9442445419452703	0.3160388795302009	0.5322143363711236	T	T	T
0.0580927071224764	0.5659547220969969	0.2648195863595220	F	F	F
0.2803149293446978	0.8159547220969969	0.3333288360968183	F	F	F
0.1695945195625377	0.5658979943999451	0.4024647013341546	T	T	T
0.0605821649686085	0.8159540348571478	0.4725258447147366	T	T	T
0.2796338241390677	0.5655681836478399	0.5324248142996535	T	T	T
0.2803149293446978	0.6909547220969969	0.2305649614908702	F	F	F
0.1692038182335835	0.9409547220969969	0.2990742112281666	F	F	F
0.0598988719275057	0.6909175606385826	0.3675589346515975	T	T	T
0.2820264077876093	0.9406914145271891	0.4350127263982351	T	T	T
0.1704188590136664	0.6913521424436776	0.5043076786726296	T	T	T
0.2803149293446978	0.9409547220969969	0.2305649614908702	F	F	F
0.1692038182335835	0.6909547220969969	0.2990742112281666	F	F	F
0.0600101719499008	0.9407371742509865	0.3675330333330596	T	T	T
0.2815063029304634	0.6915877036905962	0.4340387895776585	T	T	T

0.1713862567651265	0.9406776020483398	0.5048861786987140	T	T	T
0.0580927071224764	0.8159547220969969	0.2648195863595220	F	F	F
0.2803149293446978	0.5659547220969969	0.3333288360968183	F	F	F
0.1700034990168504	0.8160024979617493	0.4025662736659928	T	T	T
0.0599177312292373	0.5658949575005184	0.4723685318029244	T	T	T
0.2818299716488630	0.8154868323469691	0.5350014983191946	T	T	T
0.3914260404558050	0.5659547220969969	0.2648195863595220	F	F	F
0.6136482626780264	0.8159547220969969	0.3333288360968183	F	F	F
0.5026908278723671	0.5634858812718513	0.4008246275198174	T	T	T
0.3921640039762529	0.8165157557767848	0.4718414002010496	T	T	T
0.6104135026272807	0.5707852343367134	0.5394215655809123	T	T	T
0.6136482626780264	0.6909547220969969	0.2305649614908702	F	F	F
0.5025371515669192	0.9409547220969969	0.2990742112281666	F	F	F
0.3920653392156811	0.6911429093434890	0.3667656298004391	T	T	T
0.6168998626397133	0.9399104077933730	0.4323802141401978	T	T	T
0.5017742805914869	0.6897817242527061	0.4984262188342803	T	T	T
0.6136482626780264	0.9409547220969969	0.2305649614908702	F	F	F
0.5025371515669192	0.6909547220969969	0.2990742112281666	F	F	F
0.3917820472820391	0.9404573647440975	0.3670485197869150	T	T	T
0.6165635530817702	0.6890469307190898	0.4359446528441944	T	T	T
0.5036862868874672	0.9396210187330885	0.4990158519448169	T	T	T
0.3914260404558050	0.8159547220969969	0.2648195863595220	F	F	F
0.6136482626780264	0.5659547220969969	0.3333288360968183	F	F	F
0.5029312049943063	0.8148803203363307	0.3998388367427497	T	T	T
0.3904146980857618	0.5666738192402243	0.4691457028211907	T	T	T
0.6165622686494947	0.8187554810002291	0.5316800930817095	T	T	T
0.7247593737891407	0.5659547220969969	0.2648195863595220	F	F	F
0.9469815960113621	0.8159547220969969	0.3333288360968183	F	F	F



0.8365255871094398	0.5656068084297941	0.4017100417510687	T	T	T
0.7276433249829289	0.8158654214530013	0.4687286341638686	T	T	T
0.9441589661947968	0.5652834177807544	0.5322243445845791	T	T	T
0.9469815960113621	0.6909547220969969	0.2305649614908702	F	F	F
0.8358704849002550	0.9409547220969969	0.2990742112281666	F	F	F
0.7265456690828553	0.6897005798279932	0.3666529047451543	T	T	T
0.9512772122118823	0.9406515122241309	0.4345167877399824	T	T	T
0.8365149788926435	0.6906235340254918	0.5023201791647417	T	T	T
0.9469815960113621	0.9409547220969969	0.2305649614908702	F	F	F
0.8358704849002550	0.6909547220969969	0.2990742112281666	F	F	F
0.7275923425941507	0.9406397223958272	0.3658549669789963	T	T	T
0.9509153941999186	0.6905527616519114	0.4344293702649943	T	T	T
0.8372910678855052	0.9404598991066639	0.5021844644656254	T	T	T
0.7247593737891407	0.8159547220969969	0.2648195863595220	F	F	F
0.9469815960113621	0.5659547220969969	0.3333288360968183	F	F	F
0.8378802867837974	0.8155273449880778	0.4011089348796325	T	T	T
0.7250256258219168	0.5659118067435362	0.4719493421889265	T	T	T
0.9448215407111317	0.8151337166785713	0.5322445796027104	T	T	T
0.3991282882521088	0.2597812313184371	0.5847148239091768	T	T	T
0.5343163021987494	0.4321392801913124	0.6269882418427610	T	T	T
0.4005869979960497	0.6016466268666647	0.5852073525115731	T	T	T
0.5300210059579147	0.7618961208737089	0.6197018975798936	T	T	T
0.3953357689042586	0.9322342043996702	0.5847032696529574	T	T	T
0.5290901978611912	0.1039652336873951	0.6193254767298638	T	T	T
0.5781980531464782	0.2653750534356542	0.6221310319015648	T	T	T
0.4347288142504086	0.4306755170362210	0.6101506189957500	T	T	T
0.5777771768442802	0.5993298283700915	0.6234768139545681	T	T	T
0.4300262044983852	0.7678847620705395	0.6181735461077731	T	T	T

0.5752298849672468	0.9340909450881405	0.6005387125016580	T	T	T
0.4292693159688499	0.0956748452208204	0.6193601345328442	T	T	T

**Table S20.** Optimized fractional coordinates of the defective  $W_2^1(211)$  surface.

Cu Zn O

1.0000000000000000		
18.9092778365208005	0.0000000000000000	-0.0000000000000198
0.0000000000000000	10.2929071342210996	0.0000000000000000
0.0000000000000000	0.0000000000000000	21.6854392927720987

Cu	Zn	O
120	6	5

Selective dynamics

Direct

0.0580927071224764	0.0659547220969969	0.2648195863595220	F	F	F
0.2803149293446978	0.3159547220969969	0.3333288360968183	F	F	F
0.1699894446299635	0.0652341950415170	0.4025373856230395	T	T	T
0.0599375448796222	0.3161961589686039	0.4723332353294508	T	T	T
0.2795139516983391	0.0670590006738736	0.5330481514940089	T	T	T
0.2803149293446978	0.1909547220969969	0.2305649614908702	F	F	F
0.1692038182335835	0.4409547220969969	0.2990742112281666	F	F	F
0.0600443896822902	0.1906725387486705	0.3676660627525399	T	T	T
0.2821731926756684	0.4421688660567554	0.4339555860355531	T	T	T
0.1692655045477369	0.1903729995634785	0.5036764114861960	T	T	T
0.2803149293446978	0.4409547220969969	0.2305649614908702	F	F	F
0.1692038182335835	0.1909547220969969	0.2990742112281666	F	F	F
0.0599575722606143	0.4410136731592483	0.3675856199448609	T	T	T
0.2817017636335605	0.1904068577414411	0.4333061656083701	T	T	T
0.1701204710470117	0.4421518779372197	0.5042292958994635	T	T	T
0.0580927071224764	0.3159547220969969	0.2648195863595220	F	F	F
0.2803149293446978	0.0659547220969969	0.3333288360968183	F	F	F
0.1698679322924827	0.3163465794103200	0.4025651719084012	T	T	T

0.0602109103873350	0.0650961247247767	0.4723997078855941	T	T	T
0.2783930912924247	0.3157364444969811	0.5319301285110087	T	T	T
0.3914260404558050	0.0659547220969969	0.2648195863595220	F	F	F
0.6136482626780264	0.3159547220969969	0.3333288360968183	F	F	F
0.5033260483856905	0.0665305180689756	0.4002286103509972	T	T	T
0.3910441000046987	0.3163032657426945	0.4702724346574505	T	T	T
0.6134233205756991	0.0522552608618285	0.5389974214284253	T	T	T
0.6136482626780264	0.1909547220969969	0.2305649614908702	F	F	F
0.5025371515669192	0.4409547220969969	0.2990742112281666	F	F	F
0.3923831065527782	0.1904221894969446	0.3669788733233034	T	T	T
0.6171448000469759	0.4366494700469752	0.4359096483588584	T	T	T
0.5007201796717272	0.1895868644445413	0.5018589082248969	T	T	T
0.6136482626780264	0.4409547220969969	0.2305649614908702	F	F	F
0.5025371515669192	0.1909547220969969	0.2990742112281666	F	F	F
0.3926426903614176	0.4416156315676553	0.3672707219619300	T	T	T
0.6158952386034957	0.1887933734777344	0.4396053569170173	T	T	T
0.5026149387890947	0.4400730362614131	0.4983241295505599	T	T	T
0.3914260404558050	0.3159547220969969	0.2648195863595220	F	F	F
0.6136482626780264	0.0659547220969969	0.3333288360968183	F	F	F
0.5032445133484583	0.3145057368423327	0.4007034018710206	T	T	T
0.3917540075131385	0.0634645628431626	0.4707989164114620	T	T	T
0.6116754008996771	0.3171320002131527	0.5404944764730997	T	T	T
0.7247593737891407	0.0659547220969969	0.2648195863595220	F	F	F
0.9469815960113621	0.3159547220969969	0.3333288360968183	F	F	F
0.8367445332023998	0.0660981726555981	0.4019642674920711	T	T	T
0.7257854333527850	0.3155550515123281	0.4724723785332067	T	T	T
0.9450778081400865	0.0661331412683622	0.5324927160330188	T	T	T
0.9469815960113621	0.1909547220969969	0.2305649614908702	F	F	F

0.8358704849002550	0.4409547220969969	0.2990742112281666	F	F	F
0.7253686955041593	0.1909792430679038	0.3676241439538881	T	T	T
0.9508484957344253	0.4407756903114508	0.4345076211287772	T	T	T
0.8364114572756465	0.1905058499076503	0.5032930923399234	T	T	T
0.9469815960113621	0.4409547220969969	0.2305649614908702	F	F	F
0.8358704849002550	0.1909547220969969	0.2990742112281666	F	F	F
0.7264999034232887	0.4405114741544636	0.3672612459979400	T	T	T
0.9507685951453285	0.1907016266369172	0.4344757579861133	T	T	T
0.8367259133907553	0.4406224146950891	0.5030774869153014	T	T	T
0.7247593737891407	0.3159547220969969	0.2648195863595220	F	F	F
0.9469815960113621	0.0659547220969969	0.3333288360968183	F	F	F
0.8364749705818505	0.3155545349567419	0.4020268496436828	T	T	T
0.7262258268284453	0.0649884295092900	0.4720433706313738	T	T	T
0.9447535865412263	0.3154992238518240	0.5324324117242984	T	T	T
0.0580927071224764	0.5659547220969969	0.2648195863595220	F	F	F
0.2803149293446978	0.8159547220969969	0.3333288360968183	F	F	F
0.1702425263375256	0.5665800918615888	0.4026312700775586	T	T	T
0.0610294242568549	0.8153069868365171	0.4726177210644246	T	T	T
0.2818392713920037	0.5656030289075176	0.5347427644503847	T	T	T
0.2803149293446978	0.6909547220969969	0.2305649614908702	F	F	F
0.1692038182335835	0.9409547220969969	0.2990742112281666	F	F	F
0.0599881601671667	0.6908570813530464	0.3675659071590234	T	T	T
0.2825179533415155	0.9395106693404296	0.4347339820702627	T	T	T
0.1720149408928754	0.6912654964277744	0.5051243128961894	T	T	T
0.2803149293446978	0.9409547220969969	0.2305649614908702	F	F	F
0.1692038182335835	0.6909547220969969	0.2990742112281666	F	F	F
0.0600745364951679	0.9405514048910573	0.3676296769625225	T	T	T
0.2828740346653540	0.6914418529558163	0.4354631179200307	T	T	T

0.1711131415459501	0.9396276097491495	0.5045590687425088	T	T	T
0.0580927071224764	0.8159547220969969	0.2648195863595220	F	F	F
0.2803149293446978	0.5659547220969969	0.3333288360968183	F	F	F
0.1703418652082197	0.8154031580553586	0.4026530852084792	T	T	T
0.0607145575629399	0.5666132625778676	0.4725996247549192	T	T	T
0.2833978527191300	0.8168763123579229	0.5362608243081877	T	T	T
0.3914260404558050	0.5659547220969969	0.2648195863595220	F	F	F
0.6136482626780264	0.8159547220969969	0.3333288360968183	F	F	F
0.5036092210486370	0.5665148119685400	0.4005993577501614	T	T	T
0.3941489384946153	0.8142232424396151	0.4733222283448426	T	T	T
0.6129117872808061	0.5670282875515182	0.5328963668262395	T	T	T
0.6136482626780264	0.6909547220969969	0.2305649614908702	F	F	F
0.5025371515669192	0.9409547220969969	0.2990742112281666	F	F	F
0.3922122135420205	0.6910190484241854	0.3674574516068068	T	T	T
0.6180400755870898	0.9412115229264962	0.4343942224167973	T	T	T
0.5054608989141289	0.6904135965493214	0.5053683856083766	T	T	T
0.6136482626780264	0.9409547220969969	0.2305649614908702	F	F	F
0.5025371515669192	0.6909547220969969	0.2990742112281666	F	F	F
0.3925840520046127	0.9395897410123966	0.3673576934441661	T	T	T
0.6176941604339976	0.6888711258526304	0.4327665994691083	T	T	T
0.5045060748449435	0.9398144396102065	0.4969208520158747	T	T	T
0.3914260404558050	0.8159547220969969	0.2648195863595220	F	F	F
0.6136482626780264	0.5659547220969969	0.3333288360968183	F	F	F
0.5038357016877488	0.8133232934764481	0.4003255430156833	T	T	T
0.3933390110732287	0.5683471448631510	0.4720550323038363	T	T	T
0.6180751345295085	0.8055900996883815	0.5305179591648866	T	T	T
0.7247593737891407	0.5659547220969969	0.2648195863595220	F	F	F
0.9469815960113621	0.8159547220969969	0.3333288360968183	F	F	F

0.8372735587260417	0.5656636751097371	0.4017675202450576	T	T	T
0.7290046948839460	0.8150393844451232	0.4695352188734727	T	T	T
0.9455236767858723	0.5651673785107764	0.5324749988152462	T	T	T
0.9469815960113621	0.6909547220969969	0.2305649614908702	F	F	F
0.8358704849002550	0.9409547220969969	0.2990742112281666	F	F	F
0.7275948988473041	0.6904538917960387	0.3664735735332402	T	T	T
0.9511404323892856	0.9406695200964307	0.4346208023034510	T	T	T
0.8377001243501626	0.6904655521395774	0.5032553449759382	T	T	T
0.9469815960113621	0.9409547220969969	0.2305649614908702	F	F	F
0.8358704849002550	0.6909547220969969	0.2990742112281666	F	F	F
0.7269982341627461	0.9413367397525156	0.3664950713821147	T	T	T
0.9512352320898871	0.6906417836088872	0.4346590622867065	T	T	T
0.8373830225144517	0.9407358429903903	0.5032226158140091	T	T	T
0.7247593737891407	0.8159547220969969	0.2648195863595220	F	F	F
0.9469815960113621	0.5659547220969969	0.3333288360968183	F	F	F
0.8380124952789705	0.8159831865746686	0.4014504377813875	T	T	T
0.7270480764479795	0.5667138257239068	0.4713047910408584	T	T	T
0.9458134675488798	0.8157318452727620	0.5324637229561228	T	T	T
0.3960046376599460	0.3297172769677602	0.5883639032896986	T	T	T
0.5256499601716705	0.4726374377682850	0.6127013927713202	T	T	T
0.3973402956278009	0.6652444144601259	0.5867495938217961	T	T	T
0.5237522432558295	0.8546052233829124	0.6076518341980844	T	T	T
0.3935984585481339	0.9942237539352832	0.5866829515539603	T	T	T
0.5292088881978353	0.1638579557728122	0.6290100825796311	T	T	T
0.5796305402407873	0.3230221787025637	0.6265320585241601	T	T	T
0.4279215847147718	0.4973833485935691	0.6203884262680048	T	T	T
0.4266433473066299	0.8305493718435857	0.6220807534579003	T	T	T
0.5791434774697430	0.0047314202624278	0.6213221754726469	T	T	T

0.4294205150532945 0.1618690525358384 0.6164339026779940 T T T