

专题一原子制造：基础研究与前沿探索

基于 DNA 折纸模板的铁原子阵列构建及其信息加密应用*

凡洪剑¹⁾ 李江²⁾ 王丽华²⁾ 樊春海³⁾ 柳华杰^{1)†}

1) (同济大学化学科学与工程学院, 上海自主智能无人系统科学中心, 先进土木工程材料教育部重点实验室, 上海 200092)

2) (中国科学院上海高等研究院, 张江实验室, 上海光源科学中心, 上海 201800)

3) (上海交通大学化学化工学院, 上海 200240)

(2020-08-30; 2020-11-03)

DOI: 10.7498/aps.70.20201438

1 实验方法

1.1 结构组装

试剂: 通过 PAGE 纯化的未修饰 DNA 链和通过 HPLC 纯化的生物素(Biotin)、二茂铁修饰的 DNA 链(N 链)都购自生工生物工程股份有限公司(上海). 链霉亲和素购自 Sigma-Aldrich. M13mp18 骨架链购自 Tilibit. 所有其他化学品均购自国药集团. 采用 Millipore Milli-Q 集成水净化系统(电阻率为 18.2 MΩ·cm)净化水.

M 链与骨架链结合: 将 200 nmol/L M 链与 20 nmol/L 骨架链混合于 1×TAE-Mg 缓冲液(40 mmol/L Tris, 20 mmol/L 乙酸, 2 mmol/L EDTA, 12.5 mmol/L Mg²⁺, pH8.0). 过量的 M 链促进了与骨架链的完全杂交. 然后, 从 85 °C 到 4 °C 进行快速退火. 之后, 将未结合的 M 链通过截留分子量(MWCO)为 100 kDa 的离心过滤器(Millipor)去除, 该离心步骤使用 CT15RE 冷冻离心机(Hitachi)进行.

携带信息链的骨架链的交付: 将携带不同 M 链的骨架链收集在管中, 然后直接递送至 Bob. 或者, 可以将收集的混合物滴到纸上以进行递送. 如采用纸为载体, 解密时裁剪下有滴落斑点部分的纸片, 并在含 1×TAE-Mg 缓冲液中浸泡 30 min. 之后, 将残余物去除并收集上清液. 在使用缓冲液洗涤 3 次后, 将收集的上清液浓缩至最终浓度 20 nmol/L.

DNA 折纸折叠: 将订书钉链预热至 95 °C 3 min 后缓慢冷却至室温. 然后, 将带有 M 链的脚手架线在 1×TAE 缓冲液和 12.5 mM Mg²⁺中以 1 : 10 的摩尔比与订书钉链混合. 骨架链的最终浓度保持在 2 nmol/L. 然后, 将混合物在 57 °C 加

热 3 min, 然后以 $-5\text{ }^{\circ}\text{C min}^{-1}$ 的速率退火至 $25\text{ }^{\circ}\text{C}$. 然后将折叠的 DNA 折纸用 100 kDa (MWCO)离心过滤器纯化 3 次, 以去除多余的 M 和短链.

1.2 图案表征

修饰链与 DNA 折纸上延伸链杂交: 然后添加与信息链相同数量的 N 链, 并在 $37\text{ }^{\circ}\text{C}$ 下孵育 0.5 h.

添加链霉亲和素以识别生物素图案: 以 DNA 折纸上生物素的浓度十倍过量加入链霉亲和素, 室温孵育 2 h, 然后在原子力显微镜成像(AFM, Multimode VIII, Bruker Inc.)下对图案进行表征.

原子力显微镜成像: 将一小滴(约 $2\text{ }\mu\text{L}$)样品沉积在刚裂解的云母表面, 并吸附 3 min. 之后, 将 $40\text{ }\mu\text{L}$ 的 $1\times\text{TAE-Mg}$ 缓冲液加入液池, 采用 Scanasyst-fluid (Bruker Inc.) 探针在 PeakForce tapping 模式中扫描样品, 成像时保持最小力, 防止链霉亲和素被探针刮伤, 以免导致假阴性结果. AFM 表征应在样品制备完成后不久进行.

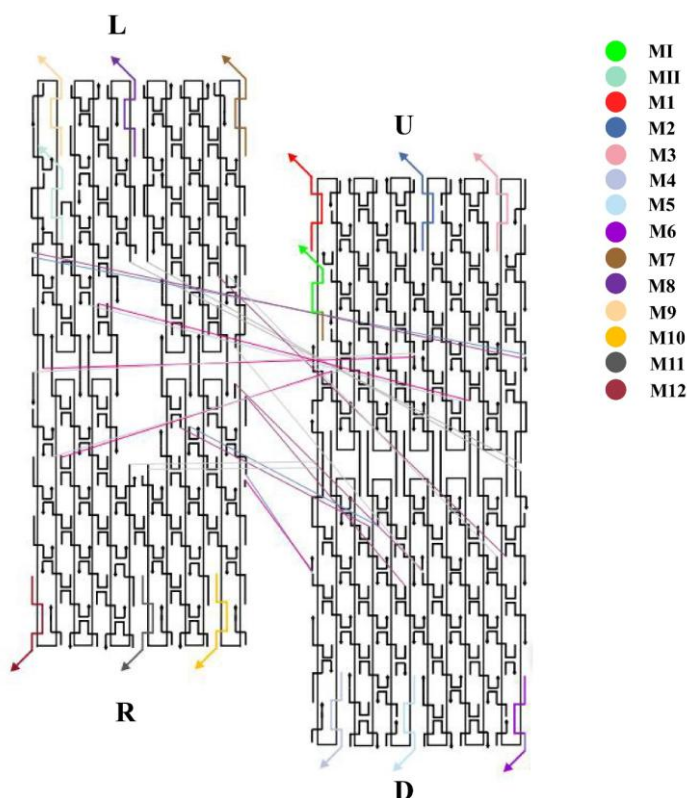


图 S1 携带所有 M 链的用于加密的十字折纸设计示意图

Fig. S1. Cross-shaped DNA origami carrying all M-strands for encryption.

名称	序列(5' to 3')
Name	Sequence(5' to 3')
M1	AGACTCCTTATTACGCAGTATGTTAGCAAACGTAGAAAATTTCTCTCACCCACCATT
M2	AGAAAACTTTTGAAATATAITTTAGTTAATTCGATCTTCTTCTCTCACCCACCATT
M3	AAAGGTGGCAACATATAAAAGAAACGCAAAGACACCACGGTTTCTCTCACCCACCATT
M4	ATAAGTATAGCCCGGAATAGGTGTATCACCGTACTCAGGATTTCTCTCACCCACCATT
M5	ACAGCATCGGAACGAGGGTAGCAACGGCTACAGAGGCTTTTTCTCTCACCCACCATT
M6	AAAACAGGAAGATTGTATAAGCAAATAITTAATTTGIAAATTTCTCTCACCCACCATT
M7	TTGATTCCTCAATTCGCGAACGAGTAGATTAGTTTGACCTTCTCTCACCCACCATT
M8	GCTGGCTGACCTTCATCAAGAGTAATCTTCGACAAGAACCCTTCTCTCACCCACCATT
M9	ACCTACATTTTCACGCTCAATCGTCTGAAATGGATTATTTTTCTCTCACCCACCATT
M10	ATTGAACCAACCATATCAAATTTATAGCACGTAAAACAGTTTCTCTCACCCACCATT
M11	ATTTAATGGTTTGAAATACCGACCAATAAGAAATAAGGCTTCTCTCACCCACCATT
M12	CGCCAGGTGGTTTTTCTTTTTCACCAGTGAGACGGCAACTTTCTCTCACCCACCATT
N	Biotin-GAATGGTGGGTGAGAGG-Ferrocene

图 S2 本工作中所用到的 DNA 序列表

Fig. S2. The DNA sequence used in this work.

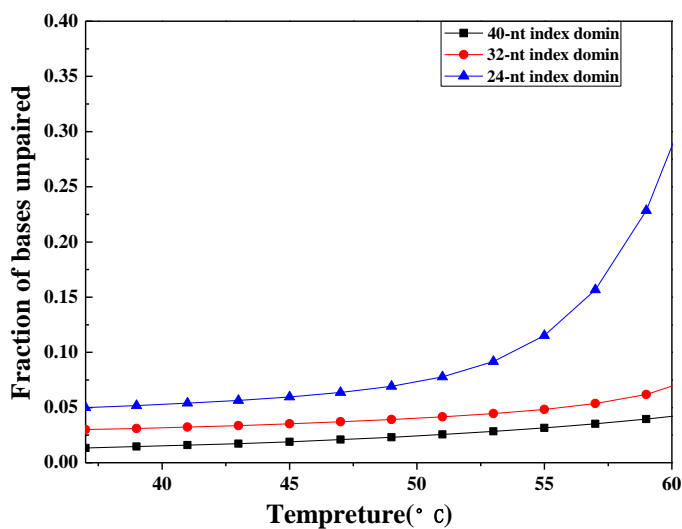


图 S3 不同结合长度的 M 链-骨架链复合物稳定性比较

Fig. S3. Comparison of stability of M-chain and scaffold complex with different binding length.

地址	地址码	汉字	区位码	区(二进制)	位(二进制)
1	00000	登	2139	0010101	0100111
2	00001	鹤	8057	1010000	0111001
3	00010	雀	4024	0101000	0011000
4	00011	楼	3405	0100010	0000101
5	00100	白	1655	0010000	0110111
6	00101	日	4053	0101000	0110101
7	00110	依	5032	0110010	0100000
8	00111	山	4129	0101001	0011101
9	01000	尽	3001	0011110	0000001
10	01001	,	0312	0000011	0001100
11	01010	黄	2738	0011011	0100110
12	01011	河	2651	0011010	0110011
13	01100	入	4075	0101000	1001011
14	01101	海	2603	0011010	0000011
15	01110	流	3387	0100001	1010111
16	01111	。	0103	0000001	0000011
17	10000	欲	5191	0110011	1011011
18	10001	穷	3978	0100111	1001110
19	10010	千	3907	0100111	0000111
20	10011	里	3279	0100000	1001111
21	10100	目	3631	0100100	0011111
22	10101	,	0312	0000011	0001100
23	10110	更	2492	0011000	1011100
24	10111	上	4147	0101001	0101111
25	11000	一	5027	0110010	0011011
26	11001	层	1867	0010010	1000011
27	11010	楼	3405	0100010	0000101
28	11011	。	0103	0000001	0000011

图 S4 28 个字符的编码信息表

Fig. S4. Encoding information of 28 character.

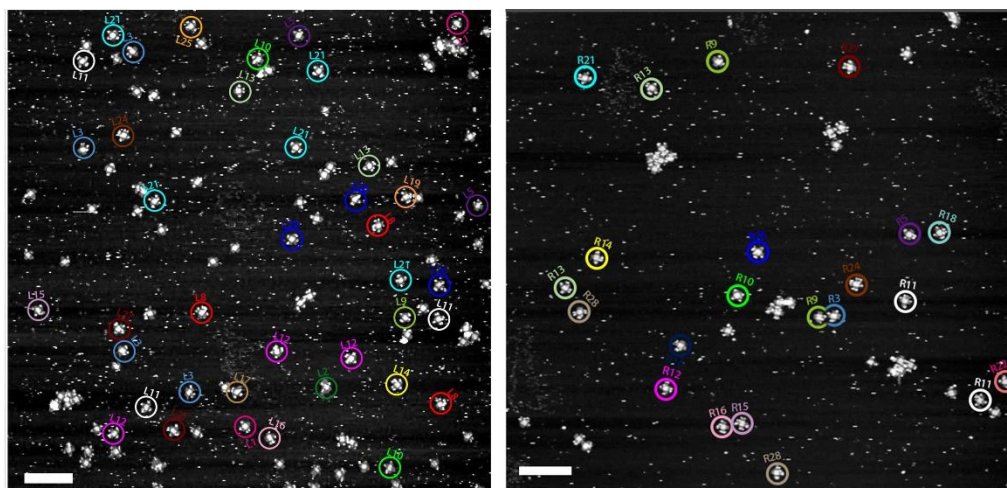


图 S5 28 个汉字的唐诗在 DNA 折纸上的原子力成像结果(坐标尺:200 nm)

Fig. S5. AFM images of the encrypted 28 Chinese characters of Tang Poem on target DNA origami (Scale bar: 200 nm).