



## DNA折纸结构介导的多尺度纳米结构精准制造

戴李知 胡晓雪 刘鹏 田野

## DNA origami mediated precise fabrication of nanostructures in multi scales

Dai Li-Zhi Hu Xiao-Xue Liu Peng Tian Ye

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 70, 068201 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20201689

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201689>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

基于聚焦离子束纳米剪纸/折纸形变的三维微纳制造技术及其光学应用

Focused ion beam based nano-kirigami/origami for three-dimensional micro/nanomanufacturing and photonic applications

物理学报. 2019, 68(24): 248101 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191494>

基于DNA自组装的金属纳米结构制备及相关纳米光子学研究

DNA self-assembly-based fabrication of metallic nanostructures and related nanophotonics

物理学报. 2017, 66(14): 147101 <https://doi.org/10.7498/aps.66.147101>

用单分子技术研究Sso7d与DNA的相互作用

Interaction between Sso7d and DNA studied by single-molecule technique

物理学报. 2018, 67(14): 148201 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180630>

基于单分子成像技术研究 $\lambda$ -DNA分子穿越微米通道端口的电动力学特性

Electrodynamic characteristics of  $\lambda$ -DNA molecule translocating through the microfluidic channel port studied with single molecular fluorescence imaging technology

物理学报. 2020, 69(16): 168202 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200074>

DNA超分子水凝胶的粗粒化建模与模拟

Modelling and simulation of DNA hydrogel with a coarse-grained model

物理学报. 2017, 66(15): 150201 <https://doi.org/10.7498/aps.66.150201>

脱氧核糖核酸柔性的分子动力学模拟:Amber bsc1和bsc0力场的对比研究

Molecular dynamics simulations on DNA flexibility: a comparative study of Amber bsc1 and bsc0 force fields

物理学报. 2018, 67(10): 108701 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180326>

专题—原子制造: 基础研究与前沿探索

## DNA 折纸结构介导的多尺度纳米结构精准制造\*

戴李知 胡晓雪 刘鹏 田野†

(南京大学现代工程与应用科学学院, 南京 210023)

(2020 年 10 月 12 日收到; 2020 年 12 月 5 日收到修改稿)

原子及近原子尺度制造在近年来一直是物质科学领域被广泛探讨的前沿问题. 当制造和加工的尺度从微米、纳米逐渐走向原子级别时, 材料在常规尺度下所具备的性质已无法通过经典理论进行解释, 相反地, 会在这一尺度下展现出一系列新奇的特性. 因而对材料极限制造尺度和颠覆性物性的不断追求始终是科学界共同关注的重点领域. 作为一种在纳米尺度下对结构制造单元进行精细操控的先进手段, DNA 纳米技术的开发和发展为纳米制造甚至原子制造提供了新的观点和思路, 而 DNA 折纸术作为 DNA 纳米技术的重要组成部分, 正在凭借其在结构制造过程当中的高度可编程性成为纳米尺度下进行各类物质精准制造的独特的解决方案, 并可能为不同物质不同材料更小尺度和任意形状的精准确构带来机遇. 本文首先简单概述了 DNA 折纸术的基本原理和发展历程, 然后根据制造策略的不同对 DNA 折纸结构的纳米制造的相关代表性工作做了总结, 并在文末提出了对于 DNA 折纸结构在原子制造中的可行性的思考和未来发展方向的展望.

**关键词:** DNA 纳米技术, DNA 折纸, 纳米制造, 原子制造**PACS:** 82.39.Pj, 98.38.Bn, 62.23.St, 87.85.Qr**DOI:** 10.7498/aps.70.20201689

## 1 引言

DNA 纳米技术的提出最早可以追溯到 20 世纪 80 年代. 来自纽约大学的 Seeman 教授<sup>[1]</sup>利用 DNA 分子碱基互补配对的天然特性, 将 DNA 双螺旋作为一种基本单元进行纳米结构的组装, 这一突破性的构思推动着研究者们对于 DNA 自组装过程进行了越发深入和广泛的研究. 自从 DNA 双螺旋的几何构型被揭示以来, 通过结合已知的 DNA 链段的几何参数和力学性能, 研究者们可以通过特定的设计, 并利用碱基之间的特异性的识别互补将 DNA 链段合成为具有特定形状的纳米结构. 在 20 余年的发展历程中, 这一技术已经成功发展出由 DNA 短链构成的各式各样的纳米结构, 甚至可以进一步诱导获得的纳米结构进行自身之间或者与客体物质之间的相互连接, 形成结构更加

复杂精密的高级结构. 2006 年, 加州理工大学 Rothemund 教授<sup>[2]</sup>开创了 DNA 折纸术, 创造地利用长链噬菌体 DNA 作为固定架, 继而将上千根短链 DNA 锚定在上面, 精准确构建出三角形、长方形、笑脸等具有不同二维结构形状的纳米结构 (图 1(a) 和图 1(b)), 这一方法极大地拓展了 DNA 自组装所能实现的纳米结构的尺寸大小和结构复杂性. 2009 年, Douglas 等<sup>[3]</sup>提出了蜂窝状的设计方案, 并对获得的组件逐个堆叠, 将 DNA 折纸结构从二维推向三维, 如图 1(c) 所示. 此外, Han 等<sup>[4]</sup>和 Dietz 等<sup>[5]</sup>先后构建出具有可控弯曲程度的 DNA 折纸结构, 如图 1(d) 和图 1(e) 所示. 2012 年, Yin 课题组<sup>[6]</sup>提出了一种不借助长链 DNA 的锚定, 仅通过短链 DNA 之间的杂交来构建 DNA 纳米结构的方法, 他们通过这种合成策略先后完成了各种复杂二维和三维结构的合成, 如图 1(f) 所示. DNA 双螺旋本身具有的碱基互补配对的天然特性保证

\* 国家自然科学基金 (批准号: 21971109, 21834004) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: ytian@nju.edu.cn

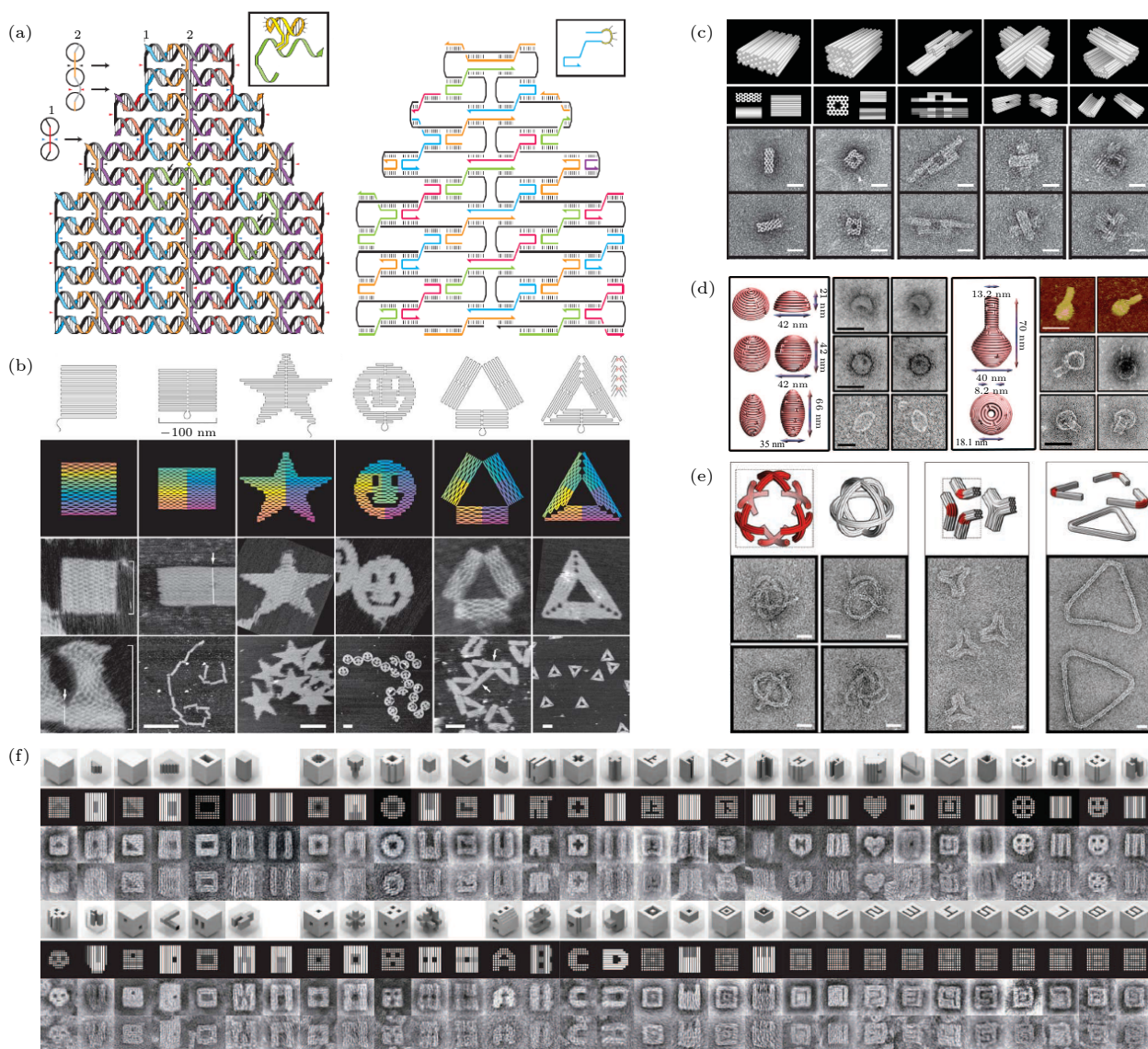


图 1 DNA 折纸结构 (a) DNA 折纸结构设计原理示意图<sup>[1]</sup>; (b) 一些典型的二维 DNA 折纸结构的原子力显微镜图片<sup>[1]</sup>; (c) 基于蜂窝状设计策略的三维 DNA 折纸结构<sup>[3]</sup>; (d) 带有曲面的 DNA 半球、球、椭球和花瓶结构<sup>[4]</sup>; (e) 带有曲面的 DNA 框架结构<sup>[5]</sup>; (f) 仅由短链组装而成的各种 DNA brick 结构<sup>[6]</sup>

Fig. 1. DNA origami structures: (a) Schematic illustration of design process of DNA origami structures<sup>[1]</sup>; (b) representative atomic force microscope (AFM) images of several 2-dimensional DNA origami structures<sup>[1]</sup>; (c) 3-dimensional DNA origami structures obtained by honeycomb design principle<sup>[3]</sup>; (d) DNA hemisphere, sphere, ellipsoid and nanoflask with curvatures<sup>[4]</sup>; (e) bent DNA origami wireframe structures<sup>[5]</sup>; (f) DNA brick structures which only composed of short oligonucleotides<sup>[6]</sup>.

了特异性序列的 DNA 链段在自组装行为当中的寻址能力, 同时基于对 DNA 链段的几何特性的充分掌握, 研究者们可以几乎任意地控制 DNA 链段的行走路径和取向, 从而进一步利用 DNA 分子精确构建各种不同维度、尺度和复杂程度的结构. 同时, DNA 分子与各类离子、分子之间的相互作用使得人们可利用各种方式让不同物质与 DNA 折纸结构进行结合, 这也使得以 DNA 折纸本身的结构因素为基础定制各种形貌的纳米结构成为可能.

## 2 DNA 折纸结构介导的纳米结构精准制造

随着人类对纳米世界的探索的不断深入, 纳米技术已经成为了一门集成了自然科学当中多个领域的前沿交叉学科. 随着观察尺度的不断推进, 人们对于物质的认识已经来到了一个崭新的水平, 并且促使研究者们对于物质的控制和操纵能力拓展到了分子乃至原子尺度, 进而逐步发展出纳米制造

及原子制造等制造方式,同时引起了对极低尺度下材料或物质新奇性质的探索.不同于切削、刻蚀等减材制造策略,纳米技术的出现允许研究者们通过对分子乃至原子的定向搬运实现纳米尺度或者原子尺度下特定结构的精密合成,即所谓的“纳米制造”或“原子制造”.这种“自下而上”的增材制造路线从根本上改变了人们获得材料的方式并使得人为定制其性质成为可能,比如当下研究者们可以使用扫描隧道显微镜对原子进行操纵. DNA 折纸术的出现为“自下而上”的制造方式提供了新的思路,利用 DNA 分子之间精准的识别,研究者们几乎可以通过合理的设计以一种化学合成的方法得到几乎任意的几何结构,并在结构中更小的范围之内定向地修饰各类分子或原子团簇等,这一独特的优势使得 DNA 折纸技术成为纳米制造和原子制造的一种解决方案.即便对这一方案的实施目前仍处在探索阶段,但是一些先驱性的工作已经将 DNA 折纸术与化学镀、微纳加工等方法结合起来实现了特定形貌和尺寸的纳米结构的制造甚至原子簇的定向排列,这为将来进一步实现 DNA 折纸术在原子制造领域的广泛应用提供了机遇.

## 2.1 DNA 折纸结构结合化学镀

与狭义上的化学镀的概念不同的是,这里的化学镀并不是在特定工件表面形成化学镀层,而是无外加电流的情况下凭借速率可控的氧化还原反应将金属离子还原成金属单质并通过 DNA 折纸结构作为模板形成特定结构的方法.

Woolley 课题组<sup>[7]</sup>以一种 T 字形折纸结构作为模板,在基底上首先与银种进行孵育,随后在银种的表面进行金单质的化学镀,从而获得单质金的 T 形结构,如图 2(a) 所示.该策略得到的金属结构在高度上最小可达 32 nm,化学镀过程完成后 T 形的枝化结构也基本保持不变.同时该工作还探究了金属离子浓度及 DNA 折纸结构的纯化过程对于金属化过程和产物的影响.

随后他们又利用一种更为复杂的回路形状的 DNA 折纸结构作为金属化模板,利用相似的反应策略,在吸附了银种的回路形折纸结构上进行金属金及金属铜的化学沉积,从而得到了回路状的金单质及单质铜结构<sup>[8]</sup>,如图 2(b) 所示.更为复杂的结构在 AFM 下仍然具有可供辨别的形状,并且具有不同镀层的结构展示出不同的平均电阻率.

与此类方法不同,Pilo-Pais 等<sup>[9]</sup>首先在长方

形折纸模板上的不同位置伸出功能化连接链,将金纳米颗粒组装在折纸模板上的不同位置,进而利用预先组装好的金纳米颗粒作为成核位点诱导纳米银在表面的生成,随着纳米银不断的生长沉积,逐渐在折纸模板表面融合成纳米级的圆环、平行线及 H 形等预先设定的形状,最终获得的形状取决于金纳米颗粒预先组装形成的图案,如图 2(c) 所示.此外,来自 Yan 课题组的 Pal 等<sup>[10]</sup>通过在三角形折纸结构的一条臂上插入预先修饰了还原基团的短链 DNA 与随后加入到反应体系中的银氨溶液发生“银镜反应”,从而使具有荧光性质的纳米银团簇定向地生长在三角形折纸的指定区域之内,如图 2(d) 所示.与溶液中游离的带有还原基团的单链 DNA 反应得到的纳米银簇相比,三角形折纸片上的纳米银簇在光谱上展现出完全不同的性质.

相似的工作也被 Hillier 课题组<sup>[11]</sup>报道,他们同样利用三角形折纸片作为模板,利用磷酸骨架上的负电荷与银氨溶液所带的正电荷之间的电荷吸附作用使银氨络离子富集在折纸骨架周围,再利用特定波长的紫外光对反应溶液当中的银氨络离子进行光化学还原,从而使富集在折纸模板周围的银氨络离子优先还原成单质银,将 DNA 组装成的三角形结构转化成单质银包覆的三角形结构,如图 2(e) 所示.

此外,Liedl 课题组<sup>[12]</sup>利用 DNA 折纸结构本身的磷酸基团带有的密集负电荷作为锚点,在溶液相中吸附预先处理过的带有正电荷的小尺寸金纳米粒子,这些均匀分布在 DNA 折纸结构上的金纳米粒子可以作为随后电沉积过程当中的成核位点来诱导单质金的覆盖,从而赋予不同结构、不同尺寸的 DNA 折纸结构及其组装体单质金团簇的包覆层,如图 2(f) 所示.

相比于以上利用 DNA 折纸自身结构特点在其表面生长金属材料的工作,Yin 课题组<sup>[13]</sup>的研究者们提出了一种完全不同的思路.他们利用 DNA 结构的自组装行为首先将两端未封口的长方体折纸与两个长方形折纸片组装成为一个具有封闭内腔的“盒-盖”结构,该结构的内腔当中已经预先锚定了金纳米颗粒作为不同形状的金属纳米粒子合成的种子,随后加入的硝酸银和抗坏血酸即可在预先设置的种子表面进行银单质的生长.在生长的过程中,具有封闭内腔的 DNA 结构充当了“模具”的作用,利用其结构特点实现了对金属物质生长形状的塑造和限制.利用这种制造思路,研究者

们成功得到了长方体、三角形、圆盘形的纳米银颗粒 (图 3(a)), 最终获得纳米颗粒具有低于 3 nm 的制造精度, 形状及尺寸与 DNA 结构的内腔结构也

较为吻合. 类似的策略也被 Helmi 等<sup>[14]</sup>用以制备长方体形状的金纳米粒子及其二聚体, 如图 3(b) 所示.

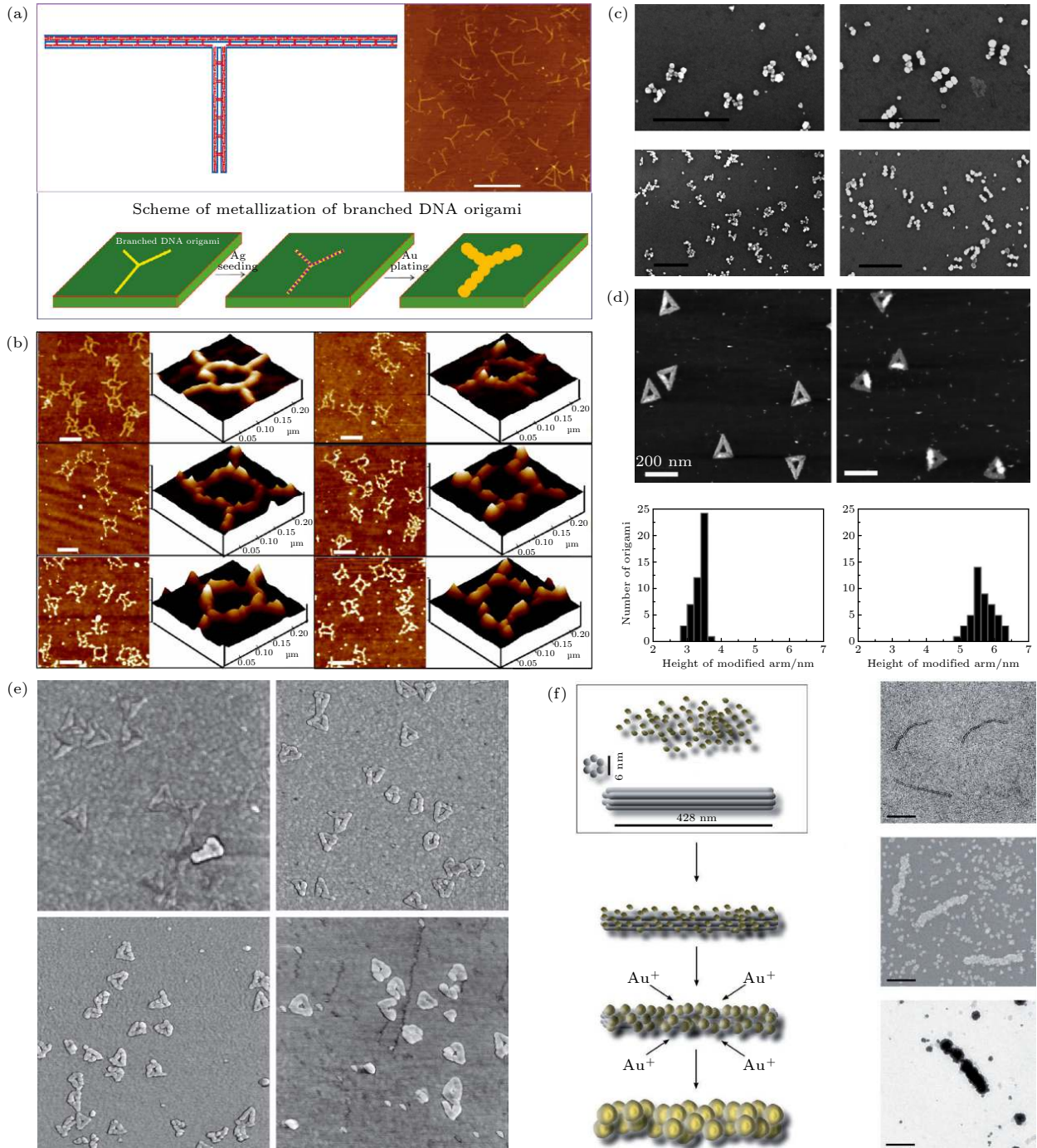


图 2 基于化学镀策略的 DNA 折纸结构的金属化 (a) 单质金包覆的 T 型折纸结构<sup>[7]</sup>; (b) 金属化的回路状 DNA 折纸结构<sup>[8]</sup>; (c) 金属化的 H 形和双杠状结构<sup>[9]</sup>; (d) 三角形折纸结构指定位置生长银纳米簇前 (左) 后 (右) 的 AFM 图<sup>[10]</sup>; (e) 银金属化的 DNA 折纸三角片结构<sup>[11]</sup>; (f) 单质金包覆的 DNA 折纸棒状结构<sup>[12]</sup>

Fig. 2. Metallization of DNA origami structures based on electroless plating strategy: (a) Au encapsulated branched DNA origami structures<sup>[7]</sup>; (b) metallized circuit-like DNA origami structures<sup>[8]</sup>; (c) H-shaped and parallel bars-shaped metallic nanostructures based on origami templates<sup>[9]</sup>; (d) AFM images before (left) and after (right) site-specific metallization on particular arms of triangular origami structures<sup>[10]</sup>; (e) Ag metallized DNA triangular origami structures<sup>[11]</sup>; (f) Au structures templated by DNA bundles structures<sup>[12]</sup>.

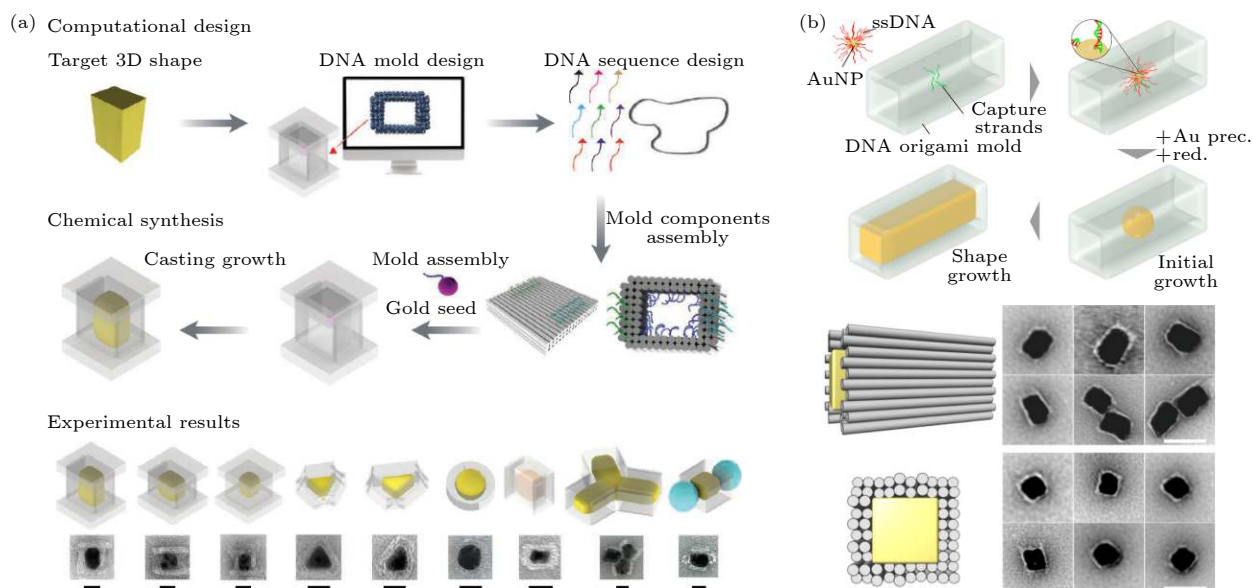


图3 利用DNA折纸结构作为模具定制形状任意的金属结构 (a) 凭借DNA模具策略制备的长方体、三角形等不同形状的银纳米结构<sup>[13]</sup>; (b) DNA模具外壳介导的棒状单质金结构及金二聚体结构的制备<sup>[14]</sup>

Fig. 3. Artificially casting metallic structures with DNA origami mold strategy: (a) Synthesizing cuboid, triangular Ag nanostructures by the utilization of different shaped DNA origami molds<sup>[13]</sup>; (b) DNA mold shells mediated synthesis of rodlike and dimeric gold nanostructures<sup>[14]</sup>.

## 2.2 DNA折纸结构功能化位点延伸策略

与2.1节中介绍的化学镀的方法相比较,功能化位点延伸策略同样可以看成一种化学镀.然而机理上不同的是,以上部分介绍的工作中采用金属种子与DNA折纸结构预先孵育或是使用金属纳米粒子作为成核位点来进一步对结构的生长进行引导.而以下介绍的工作中,功能化DNA链段的设置则为结构的定制增添了更多的任意性和选择性.

2019年,同济大学柳华杰课题组和上海交通大学樊春海课题组开发了一种在DNA折纸模板上定点生长纳米级金属图案的新方法<sup>[15]</sup>,如图4(a)所示.该工作中采用三角形与长方形折纸平面作为金属定位生长的平台,随后在折纸平面上的特定位置伸出一段具有一定长度的DNA序列,这些伸出的DNA链段相对于折纸平面具有显著的高度,可以作为金属生长的图案化成核位点.之后的金属化反应中,反应体系中存在的金属离子与伸出的DNA链段当中的胞嘧啶与鸟嘌呤具有强烈的亲和作用,只需要将金属化溶液(其中含有金属离子与还原剂)与DNA折纸模板进行简单的孵育便可以在预先设计的图案上进行金属材料的定向沉积.该策略得到的金属化图案连续性较好,具有纳米级的精度和分辨率,在原子力显微镜及透射电子显微镜下可以轻易地分辨.该策略成功证明了折纸模板上

伸出的DNA链段可以作为成核的功能化位点进而影响金属离子沉积时的选择性,从而控制纳米级精度的金属化图案只在具有功能化位点的特定位置生长.因而在该反应策略当中控制功能化位点的伸出的先后还可以控制金属图案生长的时空次序,从而实现双组分金属图案的生长.获得的异质的金属化图案均具有较高的连续性、完整程度和可辨识度,对于精细纳米电路板的定制和化学印刷具有深刻的启示意义.

同时期,国家纳米科学中心丁宝全课题组<sup>[16]</sup>的工作展示了一种与先前柳华杰课题组的工作相似的反应策略,如图4(b)所示.该工作中仍然以DNA折纸结构作为生长母体,利用该母体在结构上的可编程性在折纸结构的任意位置伸出具有特定长度的DNA单链,随后将一端修饰有巯基的DNA单链引入体系当中,对折纸结构表面伸出的具有特定长度的DNA单链进行寻址并进行杂交,即相当于通过这种方法将巯基修饰在了DNA折纸结构表面的任意位置.巯基与金属离子之间强烈的配位作用可以促使DNA折纸结构完成对反应环境中金属离子的捕获过程,进而与之后引入的还原剂发生反应,完成金属图案的选择性生长.与先前报道的柳华杰课题组的反应策略不同的地方在于该工作中引入了巯基,从而使得DNA折纸结构

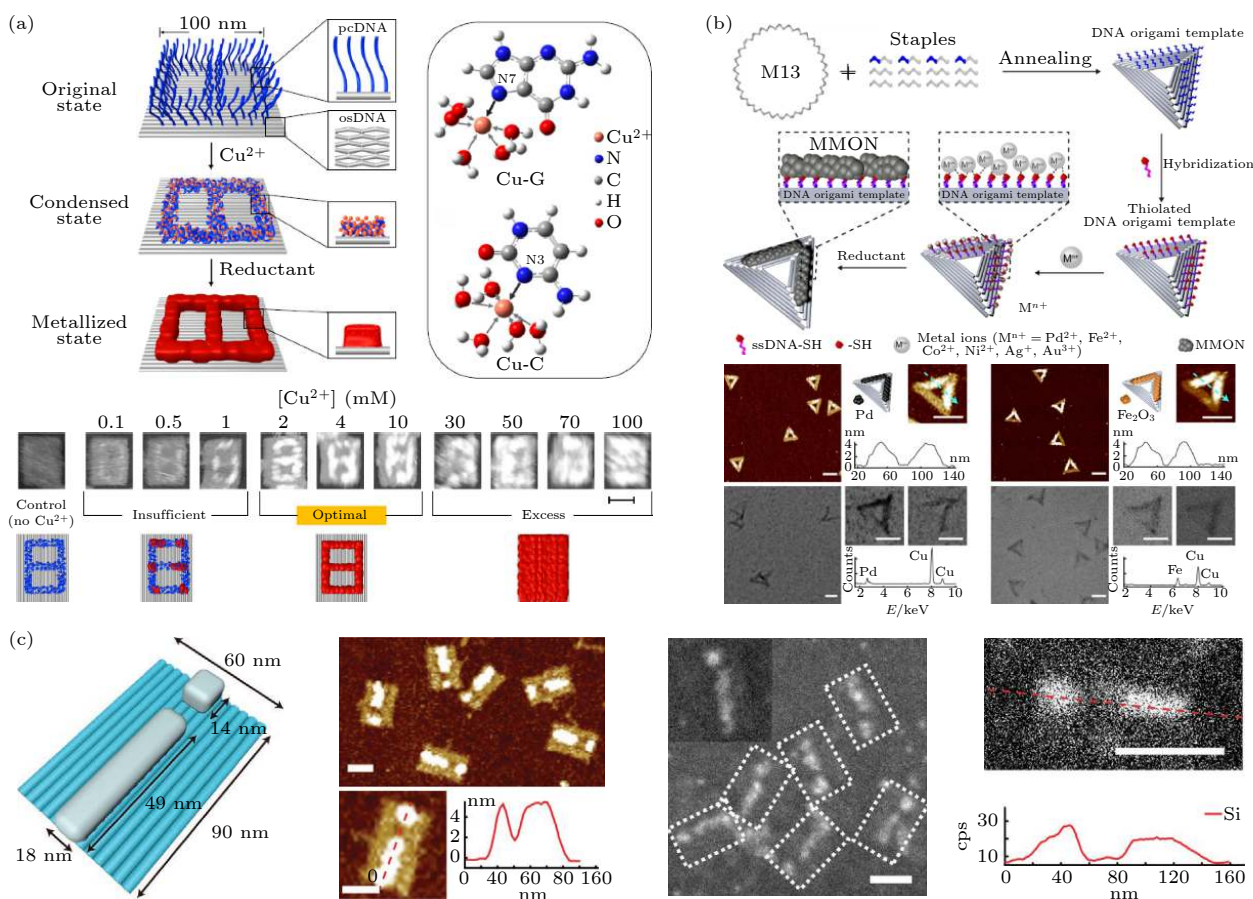


图 4 基于功能化位点延伸策略的金属结构原位生长 (a) DNA 折纸基板上 8 字形纳米电路的原位生长<sup>[15]</sup>; (b) DNA 折纸三角形结构上不同种类金属结构的定位生长<sup>[16]</sup>; (c) DNA 折纸基板上二氧化硅结构的图案化生长<sup>[17]</sup>

Fig. 4. *In-situ* fabrication of metallic structures based on the functional sites extension strategy: (a) *In-situ* synthesis of 8-patterned nano-circuit on DNA origami substrate<sup>[15]</sup>; (b) site-specific synthesis of varying metallic nanostructures on triangular DNA origami structures<sup>[16]</sup>; (c) patterned growth of silica on DNA origami structures<sup>[17]</sup>.

与金属离子之间的亲和力由碱基-金属离子配位作用转换为巯基-金属离子配位作用, 但两种反应策略的效果是相似的, 均可以得到纳米级精度的并且具有一定形状的定制化金属图案。

在此工作的基础上, 丁宝全课题组<sup>[17]</sup>利用相似的反应策略同样实现了二氧化硅物质的定点生长, 如图 4(c) 所示. 在该工作中研究人员同样利用三角形折纸和长方形折纸平面作为沉积平台, 通过特异性的设计从折纸平面上伸出 DNA 链段, 相当于赋予该平台一定数量的位置特定的功能位点, 进而利用这些突出的功能位点与反应体系中的硅源前驱体率先接触, 诱导二氧化硅材料的优先沉积, 从而成功将该类基于伸出的功能化连接位点的精准图案化定向生长策略从金属材料拓展至无机材料。

由于 DNA 折纸结构在设计时充分的可寻址性, 人们几乎可以任意地指定功能化 DNA 链段从整体结构中伸出的位置, 从而准确地对材料的沉积

位点进行编辑, 通过调控 DNA 链段伸出的数目和位置, 可以进一步调控材料沉积的密度和反应过程, 从而控制最终产物的尺寸和形状甚至性质。

### 2.3 DNA 折纸结构结合微纳加工

与 DNA 折纸术这种“自下而上”的合成方法不同的是, 微纳加工一般通过刻蚀、电/激光加工、压印、封装、3D 打印等技术手段实现体块材料的减材<sup>[18,19]</sup>. 通过引入一定的微纳加工技术与 DNA 折纸结构相结合, 获得的金属纳米结构的连续性和结构完整性得到了明显的提升. 作为一种完全不同的制造策略, 研究者们可以通过 DNA 折纸结构与基底材料之间的相互作用直接沉积在上面, 具有特定形状和尺寸的 DNA 折纸结构可以发挥类似于光刻工艺当中的“掩模板”的作用, 再利用微纳加工的方法进行纳米级金属结构的制造和裁剪, 从而将自上而下与自下而上的制造工艺结合起来。

Liu 课题组<sup>[20]</sup> 利用沉积在二氧化硅基底上的三角形折纸结构作为掩模板, 利用氟化氢蒸汽对二氧化硅基底进行刻蚀, 通过调整反应过程当中水的浓度来调整刻蚀过程的剧烈程度, 从而将三角形折纸结构拓印为相同形状的凹坑或凸台, 如图 5(a) 所示. 三角形折纸结构本身具有的孔洞经过刻蚀之后仍然保留在二氧化硅基底上, 展现出该策略纳米级的制造精度.

利用相似的氟化氢蒸汽刻蚀的方法, Diagne 等<sup>[21]</sup> 利用中间带有一个孔洞的长方形折纸结构作为模板在二氧化硅基底上定向刻蚀出了与模板结构和形状几乎相同的二氧化硅图案, 如图 5(b) 所示.

值得一提的是, 片状折纸结构上的尺寸为  $9 \text{ nm} \times 14 \text{ nm}$  的孔洞在刻蚀后得到的图案上仍然具有  $7.8 \text{ nm}$  的尺寸, 表明该策略的刻蚀精度已经突破  $10 \text{ nm}$ .

此外, Linko 课题组<sup>[22]</sup> 在氧化铝/氮化硅/硅/二氧化硅复合基底上沉积了三种不同结构的 DNA 折纸单体, 并以这三种单体作为掩模板在基底上留下相应形状的凹槽, 再用单质金对凹槽进行填充, 最后再将原有的基底逐步剥离, 最终获得与折纸单体形状相同的单质金结构, 除此以外还测定了不同单质金结构相应的光学性质, 如图 5(c) 所示.

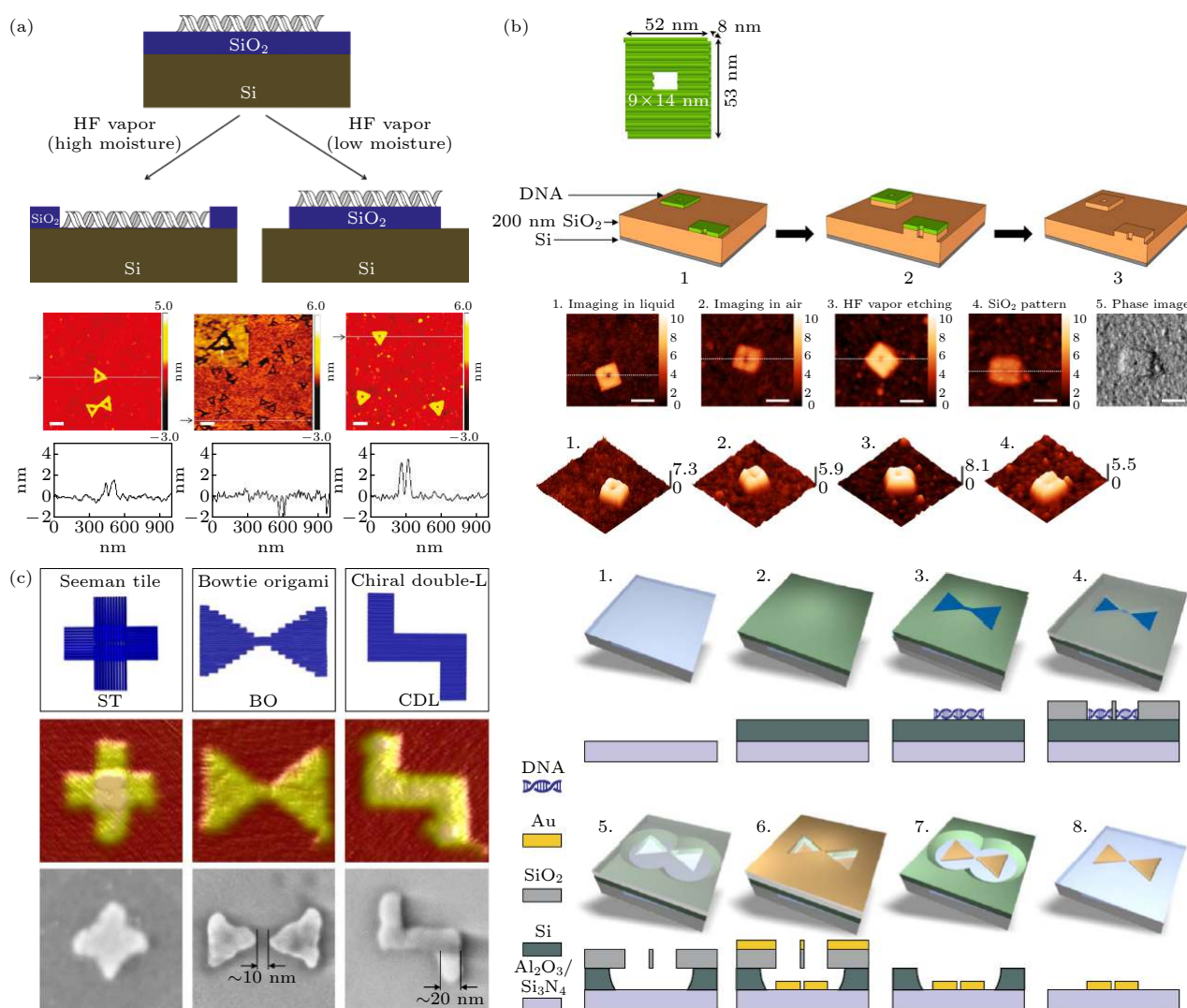


图 5 基于类平板印刷术的人工金属结构的制备 (a) 氟化氢蒸气浓度控制的二氧化硅基底上三角形凹槽和凸台结构的制备<sup>[20]</sup>; (b) 以孔状 DNA 折纸结构为掩模板制备的高精度二氧化硅图案<sup>[21]</sup>; (c) 基于平板印刷术对 DNA 折纸结构逐步复制制备等离子体金纳米结构<sup>[22]</sup>

Fig. 5. Fabrication of artificial metallic nanostructures based on the surficial lithography: (a) HF vapor moisture induced fabrication of silica trenches and ridges patterns<sup>[20]</sup>; (b) DNA origami mask mediated hole patterned silica fabrication with high precision<sup>[21]</sup>; (c) step-by-step lithographic fabrication of plasmonic nanostructures based on the duplication of DNA origami structures<sup>[22]</sup>.



### 3 总结与展望

由于 DNA 折纸结构在设计端展现出的高度可编程性, 研究者们几乎可以在构建出的结构上任意位置对 DNA 链段进行编辑和控制, 比如: 对 DNA 链段进行特定长度的延伸, 对序列进行特异性编辑, 以及在链段的特定位置插入或修饰功能化基团和某些特定的小分子, 从而赋予链段一定的功能. 人们已经可以利用这种对 DNA 折纸结构的程序式调控方法使其在任意位置精确地连接各类无机纳米颗粒、蛋白质、酶等物质, 以及进一步调控折纸结构之间的组装行为. 作为结构单元的 DNA 链段本身在 DNA 折纸结构当中具有的极高的空间精确程度, 利用其高度的可寻址性, 可以知道 DNA 折纸结构中任意位置的元素组成、原子个数及种类, 甚至可以给出某种原子在整个结构中的分布及坐标位置. 以磷原子为例, DNA 折纸骨架当中的磷原子均位于 DNA 链段的磷酸骨架上, 便可以知道磷原子在整个折纸结构当中的走势及所处的位置. 可以进一步通过在磷原子上修饰特定的基团使其捕获或使磷原子直接缔合相应的原子来得到某种原子的花样. 并且由于用于形成 DNA 折纸结构的 DNA 链段的碱基序列是可以合理的设计进行人为拟定的, 甚至可以利用原子或原子簇与不同碱基的亲合力不同来选择性地操纵原子和原子簇在与 DNA 折纸结构缔合时的顺序和位置,

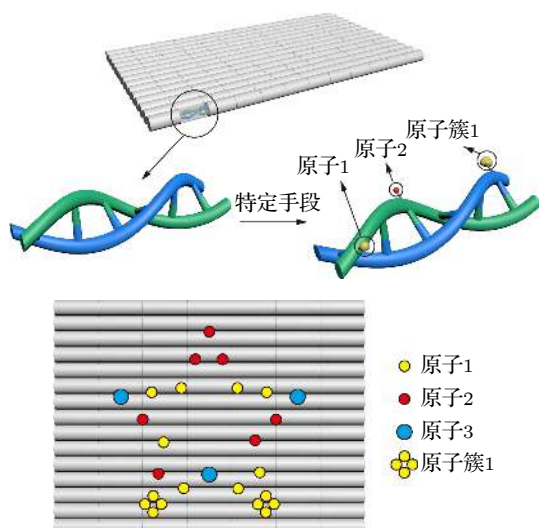


图6 利用DNA折纸结构为模板进行原子或原子簇的定向排列示意图

Fig. 6. Schematic illustration of utilizing DNA origami structures as templates for assigning atoms and clusters at designated positions.

如图6所示. 基于DNA折纸结构当中DNA序列的特异性, 甚至可以根据碱基序列找到我们放置原子或原子簇的特定位置, 从而通过一定的手段在特定位置对目标原子进行定点安插, 实现几乎任意的原子排布. 时至今日, DNA纳米技术和DNA折纸技术的发展已经允许我们通过对小至几十纳米的结构单元的操纵实现微米级甚至毫米级组装体的构建, 通过以上构想的方法, 也许可以在大尺度下进行原子或原子簇的精密排列, 得到其具有特定结构或特定排列模式的大范围阵列. 我们有理由相信, DNA折纸单体本身所具有的在结构搭建上的无与伦比的精准性及其组装产物在尺寸上的可拓展性, 使得通过这种方法来排列特定原子进而制造某些具有特定性能的器件成为可能.

### 参考文献

- [1] Seeman N C 1982 *J. Theor. Biol.* **99** 237
- [2] Rothemund P W 2006 *Nature* **440** 297
- [3] Douglas S M, Dietz H, Liedl T, Högberg B, Grag F, Shih W M 2009 *Nature* **459** 41
- [4] Han D, Pal S, Nangreave J, Deng Z, Liu Y, Yan H 2011 *Science* **332** 342
- [5] Dietz H, Douglas S M, Shih W M 2009 *Science* **325** 725
- [6] Wei B, Dai M, Yin P 2012 *Nature* **485** 623
- [7] Liu J, Geng Y, Pound E, Gyawali S, Ashton J R, Hickey J, Woolley A T, Harb J N 2011 *ACS Nano* **5** 2240
- [8] Geng Y, Pearson A C, Gates E P, Uprety B, Davis R C, Harb J N, Woolley A T 2013 *Langmuir* **29** 3482
- [9] Pilo-Pais M, Goldberg S, Samano E, LaBean T H, Finkelstein G 2011 *Nano Lett.* **11** 3489
- [10] Pal S, Varghese R, Deng Z, Zhao Z, Kumar A, Yan H, Liu Y 2011 *Angew. Chem. Int. Ed.* **50** 4176
- [11] Hossen M M, Bendickson L, Palo P E, Yao Z, Nilsen-Hamilton M, Hillier A C 2018 *Nanotechnology* **29** 355603
- [12] Schreiber R, Kempter S, Holler S, Schüller V, Schiffls D, Simmel S S, Nickels P C, Liedl T 2011 *Small* **7** 1795
- [13] Sun W, Boulais E, Hakobyan Y, Wang W L, Guan A, Bathe M, Yin P 2014 *Science* **346** 1258361
- [14] Helmi S, Ziegler C, Kauert D J, Seidel R 2014 *Nano Lett.* **14** 6693
- [15] Jia S, Wang J, Xie M, et al. 2019 *Nat. Commun.* **10** 5597
- [16] Li N, Shang Y X, Xu R, Jiang Q, Liu J B, Wang L, Cheng Z H, Ding B Q 2019 *J. Am. Chem. Soc.* **141** 17968
- [17] Shang Y X, Li N, Liu S B, Wang L, Wang Z G, Zhang Z, Ding B Q 2020 *Adv. Mater.* **32** 2000294
- [18] Cao H, Zheng M, Dong X, Jin F, Zhao Z, Duan X 2013 *Appl. Phys. Lett.* **102** 201108
- [19] Xing J, Zheng M, Duan X 2015 *Chem. Soc. Rev.* **44** 5031
- [20] Surwade S P, Zhao S, Liu H 2011 *J. Am. Chem. Soc.* **133** 11868
- [21] Diagne C T, Brun C, Gasparutto D, Baillin X, Tiron R 2016 *ACS Nano* **10** 6458
- [22] Shen B, Linko V, Tapio K, Pikker S, Lemma T, Gopinath A, Gothelf K V, Kostianen M A, Toppari J J 2018 *Sci. Adv.* **4** eaap8978

SPECIAL TOPIC—Toward making functional devices at an atomic scale:  
Fundamentals and frontiers

## DNA origami mediated precise fabrication of nanostructures in multi scales<sup>\*</sup>

Dai Li-Zhi    Hu Xiao-Xue    Liu Peng    Tian Ye<sup>†</sup>

(*College of Engineering and Applied Sciences, Nanjing University, Nanjing 210023, China*)

( Received 12 October 2020; revised manuscript received 5 December 2020 )

### Abstract

Atomic and atom-like manufacturing has thoroughly investigated by researchers from physical science and materials science in recent years. Several novel properties which cannot be explained by classical theories can be revealed by materials in the case of the manufacturing scale progressing from micron and nanometer to atomic level gradually, so that researchers from related fields have shown the constant pursuit of ultimate manufacturing scales and subversive properties. As an advanced method of precisely manipulating the structural units on a nanoscale, DNA nanotechnology has brought a new insight into nano/atomic manufacturing during its evolution. Meanwhile, the DNA origami technique has proposed the solutions for the accurate fabrication of matters based on its remarkable programmability in design process and might create opportunities for precise construction under more minute scale and more arbitrary shape for multiple matters and materials. In this review, we first briefly summarize the fundamentals, evolutions and several representative researches of DNA origami technique, and then we further summarize some corresponding investigations of nano-fabrications based on the DNA origami structures according to the fabrication strategies. Finally, we put forward some considerations of the potential feasibility in utilizing DNA origami structures for atomic manufacturing and give some prospects for the future development of this field.

**Keywords:** DNA nanotechnology, DNA origami, nanomanufacturing, atomic manufacturing

**PACS:** 82.39.Pj, 98.38.Bn, 62.23.St, 87.85.Qr

**DOI:** [10.7498/aps.70.20201689](https://doi.org/10.7498/aps.70.20201689)

---

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 21971109, 21834004).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [ytian@nju.edu.cn](mailto:ytian@nju.edu.cn)