

**Supporting Information for:**

**Switchable Supracolloidal 3D DNA Origami  
Nanotubes Mediated through Fuel/Antifuel  
Reactions**

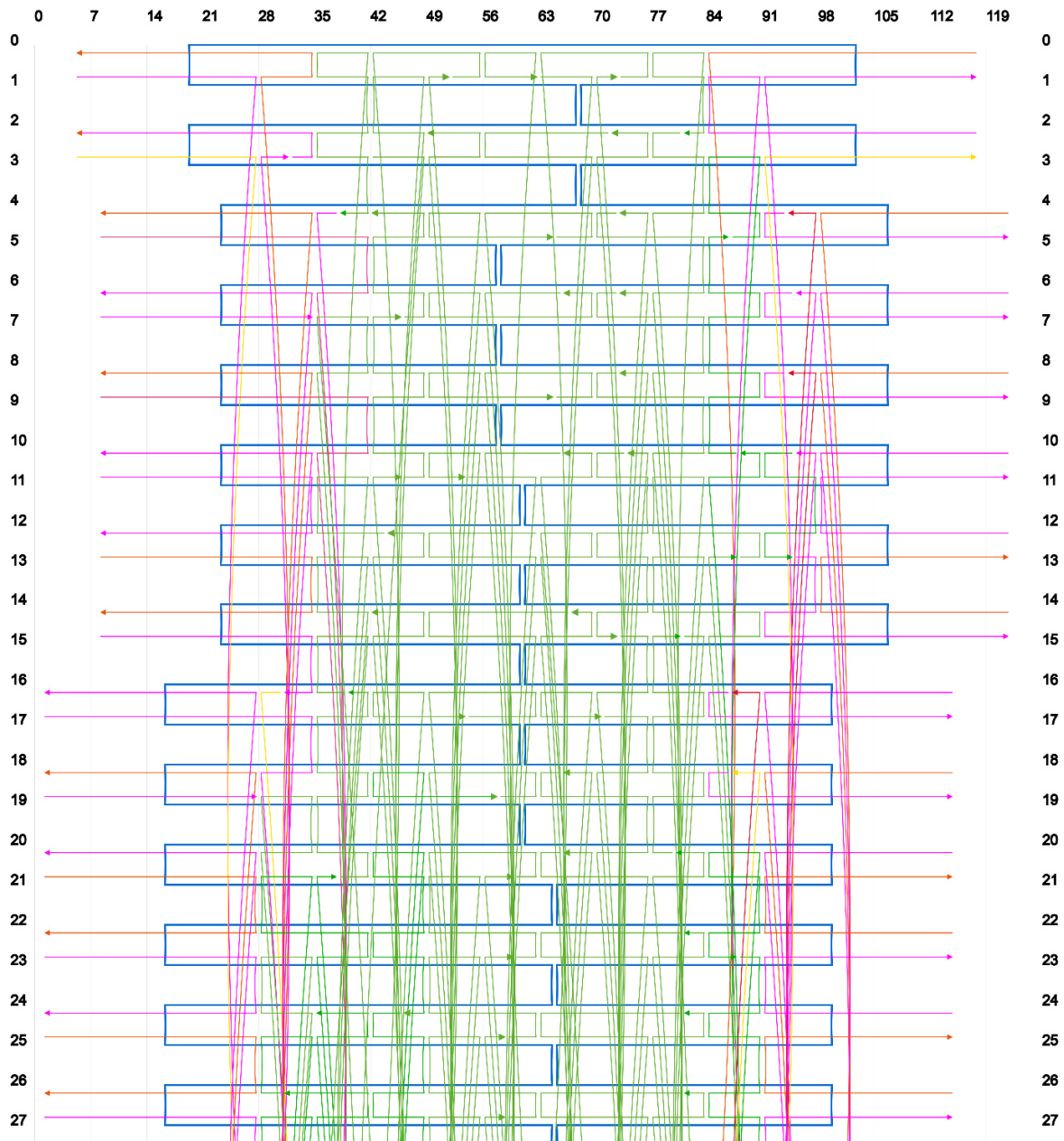
*Saskia Groeer<sup>a-c</sup>, Andreas Walther<sup>a-d\*</sup>*

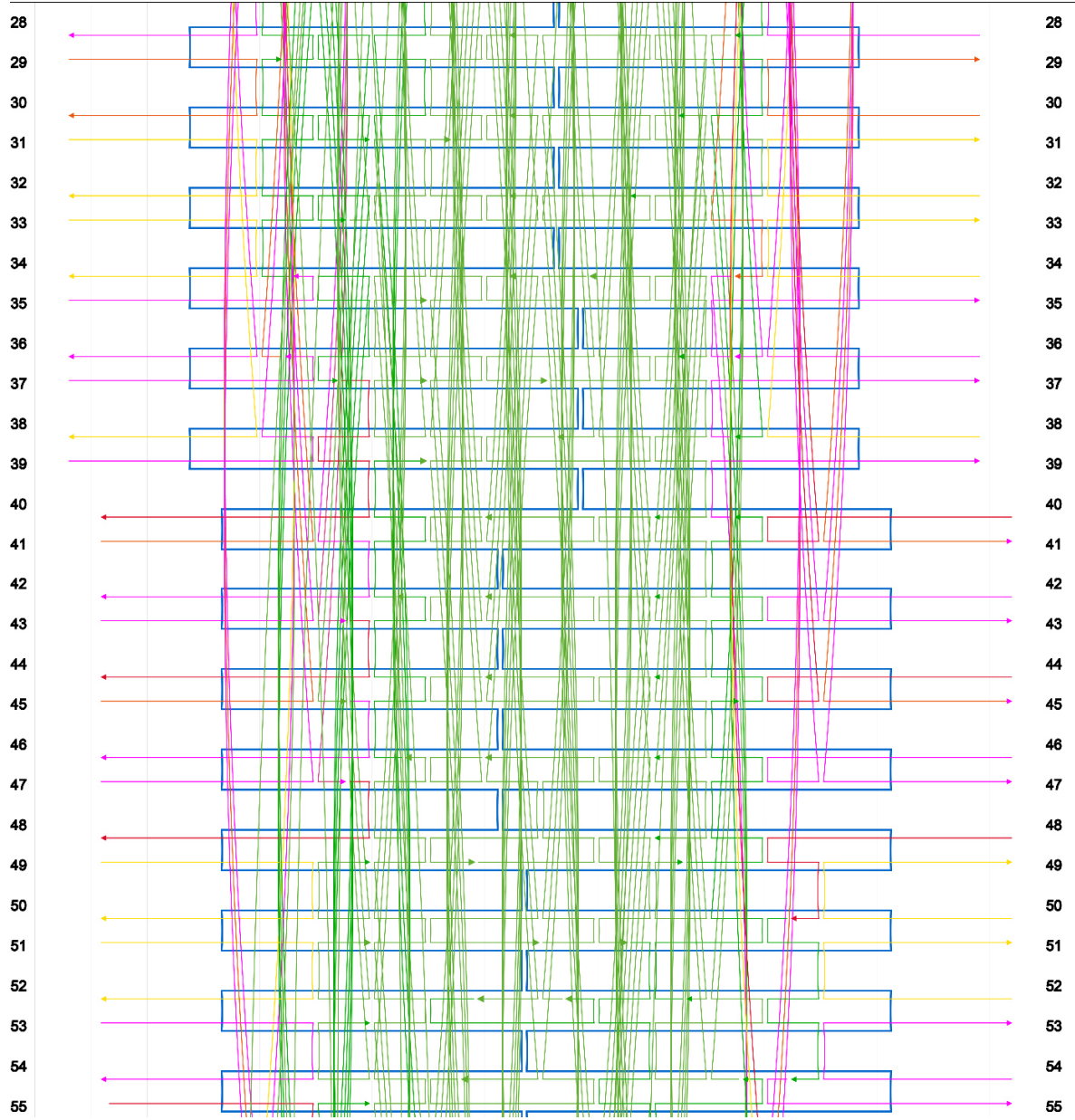
a. A<sup>3</sup>BMS Lab – Active, Adaptive and Autonomous Bioinspired Materials, Institute for Macromolecular Chemistry, University of Freiburg, Stefan-Meier-Straße 31, 79104 Freiburg, Germany

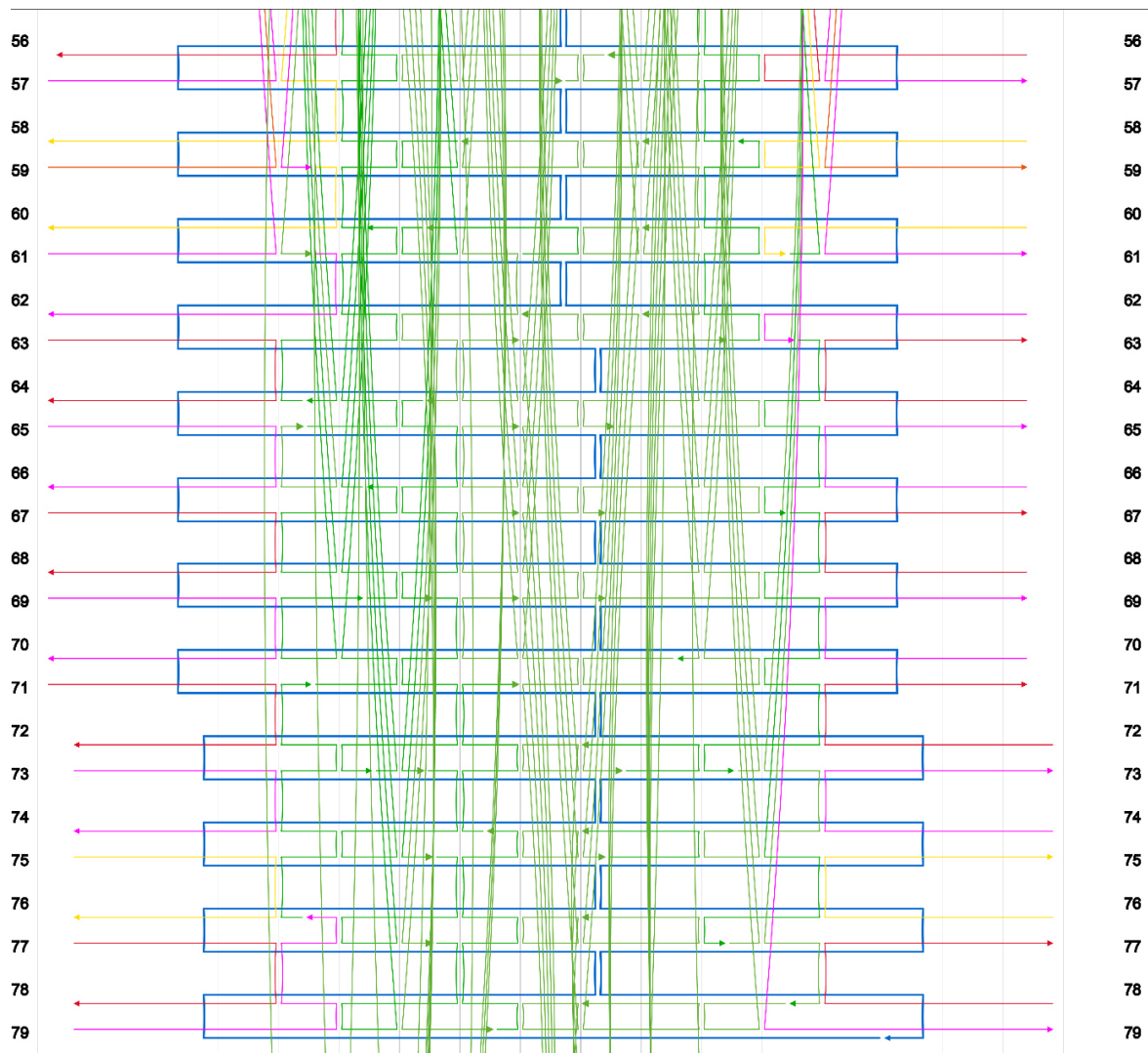
b. Freiburg Materials Research Center (FMF), University of Freiburg, Stefan-Meier-Str. 21, 79104 Freiburg, Germany

c. Freiburg Center for Interactive Materials and Bioinspired Technologies (FIT), University of Freiburg, Georges-Köhler-Allee 105, 79110 Freiburg, Germany

d. Cluster of Excellence livMatS @ FIT, 79110 Freiburg, Germany







**Figure S1. 3D-DNA-NC folding map.** Scaffold is depicted in blue, core staple strands in green, poly-thymine passivated strands in pink and connector overhangs in red (8 connectors), orange (16 connectors) and yellow (24 connectors).

**Table S1. Sequences of core staples.** Names denote both the function of the staple strand and its position according to the line numbers in Figure S1: [function- 5' position – 3' position].

Name	Core staples 5'→3'
core-2-42	GTG CGG AGT GTG TCA TAC AAA AGG TCA GAG GC
core-69-73	CCC ATA GCT GGA AGC ATG CTA ACT CAC ATT AGG GA
core-61-60	ATT CTC CGA GAA CGC CAT CAA AAA T
core-29-69	TAT TTT AAT AAA TTA CCT TGT GAA AAG GTC GAC TC
core-65-21	GGA AAC CAG GCG ATC GCA TCC

core-26-66	GTT CTG CTC AAC GAC GGA GGG GGA TGT GCT GTC GG
core-77-37	TGA AAT CAA AAG AAT AGG AAC AAG ATT CAT TAA ACG AGC AAA GCG AAG
core-20-65	TAC GGT AAG AAA AGT AAC GAC AAC TCG TAG AGC GA
core-58-19	ATT TAA ACT CAT TTT GCC ACT ATC TTT GAC CCC CAG C
core-31-69	CCC TAC ATT CAT CAT CAG CGT TGG GAA CTG GCC ATG GTC CGG GTA C
core-69-24	TAG ATT GTA AAT TCA GTG AGA ACC G
core-42-39	GAT GTC TGG AAA TGC TGA AGA GGT
core-5-38	CAG AAG TAA GCA CTG GTA CTA A
core-42-6	ATA TAA CTT TCG CAC ATA GTT TCT GTA TGG TCA GAG CCA CCA TTG G
core-54-52	AGC ATC AAC CGT TAT TCA TTA AAG GGG GAA TTA AT
core-76-71	GGT TCT TTT CGC GTA TTT CCA GTC ATT GCG TCA AC
core-21-16	GCG AAG TAC AAA ACA CTC ACG AAG GTC ATG AGC GA
core-61-23	TTC CCC GAG GAG CCG AAC AAT AGC TTA AG
core-37-1	GCT TCA ATC AAT AAC TCA TCG TT
core-56-17	ATT TAG ATT TGT TTA CCT ATA AAA G
core-60-55	GTC AAA TCA GTT GTA AAA GAA AAG ATC GTA ACA TTG CC
core-46-11	GTA GTA GCA ATA AAA ATA ATT TAT CG
core-32-1	GAT ATA GCG TGA GAA GGG AAT AGG
core-1-32	AAT GCT GAG ACT CCT CAA CCA GGC TTA TCC GGT GA
core-2-38	TAA ACA CCG TAC TCA GGG GAT AGC AAG CGA ACC AA
core-17-57	AAA CGG GCA AGG CGA AAG ACA GCA ACA GGA AGA TT
core-73-72	AGT CTT TAA CCA GCA GAA GAT GG
core-30-75	ACC CGT TTA CCA TCA AGA TTA GTT GCG TCT TTC CAG AGC CT
core-52-10	CAA TCG TCG CTA TTA ATT ATA GCT TCG ACA GAC GT
core-70-26	CAG CAA ATG ATG GAA AAC AGA GGT GAG GCG GTT GAG AGC AAA TAG CGA A
core-15-13	CAT AAA GAA GAT TAC ATT TAA CAA GTA CAT AAG AG
core-71-26	ATA CGA GCC GTT TCC TGT ATG CGA GGC TTG AGA TG
core-4-44	CTT TAA ATC CTC ATT AAG GCA GGT GTA GGG CTA TGC GT
core-63-67	TTA CTT TAC ACA TTT GAT AGG AGC TGA
core-49-45	CAT AGG TCT GGG GTT ATG AAA ACT TGA CCT AAT AA
core-1-79	CCC GAT TAG GAT TAG CGG AAT GTT TCA TAA ATA GTC CAC TAT T
core-78-36	GCT CAT GGA AAG GGC GAC AAG CAA AGC CGT TGT AC
core-66-64	TGC TGT ACA GTA AGG GAA CCG AAC GTC GAA ACT CC
core-25-65	CGA GTC ATC AAG AGT AAT GCA TAG GGT TGG GAC ATT CGC

core-67-73	GGA ATC AAT CAT TGC TGA GCC ACG CCA GTA TTT ACC GAA CGA ACC ATG CG
core-18-62	GGC AAG AAC TGG CAT GAT AAT AAC GCG GAA TCG GAA CA
core-14-54	CCG TCA CGC ATA ACC GAT TCA CCC TCA GCA CGA TAA TGC CGG
core-49-46	GCC TTT AAT AGT GAA ATG CTG AAT CGC AAA AAT ACC GAC CGT A
core-33-4	TAA GGT TTT GGG TTG ATC CAC CCT GAG CCA CCT GA
core-6-42	CCT TGA TAC TAA ATA AAG CCA ACG AGC CAG TAA TAA CC
core-34-78	TAG AAA GAC TCC AAC GTC AAA TAC CTA CAT TTG G
core-60-24	AAT TAA CAA CGA AAC AAC CTG CTC TCA ATC AAC CAG GCC TT
core-19-58	GAT AAA ATA AAA TAC GTA ATT TAA CCA ATA GTT TGG TAT AAG CAA AT
core-38-2	AGC GAA CCA GCG GAT GGC TTA TTT ATC AAC TGT AGA ATG ATA CAC CGT A
core-20-15	CAA TTA AGA CAA ATA CAA AAG ACA AGA AAA TGC GA
core-44-9	GTC AAT ATT CTA CTT TTT GCT GAA TTG CGA TAT TAG C
core-45-40	ACA AGT ATC ATT AAT TGA TTT AGG AAA GTA ATC AG
core-23-28	AGC TAA TAT CAC AAA GTA AAC AGG AGC CTT TCA AA
core-5-40	ACA AAT TCC AAT AGG AAC CTT GAG AAT ATA AAG TGG AGC TTA ATT GC
core-24-69	GAG ATA ACC CAC AAG ACT AAA ATT AAC TGA ACG TCA GTT GGC AAC CGA A
core-36-40	CGC ATC GGC TAC GAG CAA ATA GAT ATG CAG A
core-64-69	GAA AAA GCG CAG GGC GAC AAG GCG CAC GAC GGG AT
core-27-67	TTA TAC CAG AAC GAG TAG CTT GCC CTC CCA GTA TTA AGT
core-50-54	GCG AAT TTT CGG AAA CAT TTC ATT CAA T
core-21-64	GCC CCT ATA CCA AGC GCC CGT CGG GGA ACA AAC GGC GGT GCA TCT TCA G
core-75-74	CTG GCC AAC AGT TTT GAA TGG CTA A
core-73-75	AAC ATC TAC GAC AGG TAG AAA GAT ACT AAT GAG AC
core-65-20	GCC GTC AAT AGA TAA TAA ACA ATT GCA GAT AAA CG
core-10-13	AGC GAT CAA GTC ATT AGC GCA A
core-67-22	TCA ACA GTT GAA AGG AAT ACT AAC ACC AAT AAA TC
core-9-44	GTT TGG AAC CGC CAC CCG AAA TGT GAT AAA TAA ATT CTT ACC AGT TG
core-28-73	GGA TTG AGA TTT AGC CTA ATT TGC TTT TTT GTT TAA CAT GAT T
core-6-46	CGA CCC TCA GAG CCG CCA GCC GCC AAT AAG AAA TTT AA
core-17-60	AAA CGC TAC ATA ATG AAT AAA TCC TGA
core-13-49	CCA AAG GCC GGA AAC GTT CAG TAG AGA TTA AAA AT
core-63-58	GAA CCA TTT TGT ATC ATC CAA TAT ATG GAA GGG TA
core-51-56	AAT ATA TGT GAA AAT TAA TGA TGA TTT GAA TAA CAA TAA CGG

core-30-78	CGA GCT ATT TTG CAC CCC TTG CGG ATG GAT TAA AC
core-32-76	AGC CTT AAA GAT CTG ACG CTC AAT CTA AAA GGG ACA TTT
core-51-10	TTG CTT CAG AAG AGT AGC AGC TCA T
core-7-37	TTT AGC GTA ACA TTC CAC GTA ACA CAC CCT CAG CAA ACC AAA TAT
core-16-53	GGG TCT TTT GCA TTT TTG TAT TCA A
core-24-73	GAC AAA TAA GGT AAA TTG TTT TAA GAA GAA AAC TG
core-12-49	AAT TTC TTA GGA GCC TAA TTT TTG TAA TAC
core-10-49	AGC CCC CTA TGC ATC CAT GCA ACT CAG AGC AGG AGA A
core-11-51	GTT TAT CGA TCA TTT CAA CGC AAG TGT AGG TAA AGC C
core-40-5	TGA ATA TAG TTT CAC ATG TAC CAG ACA GCC TTC ACA A
core-79-74	AAA CCT TAT ATG GTG GTT GGC CCT CAA CAG CAC GC
core-26-70	GCG CAT TAG ACG GGA GAC ACC GTC AAA AAT GAC AG
core-57-17	CGC GAG AGA ATC GAT GAA CGG TAC CCC AAA ATC GGA AGA AGT TTC CAT T
core-77-2	TGA AGA GGT TTT ATT CTA TAA GAG GCC CCC TGA CA
core-1-37	TGT ATC AGA TTT ACC CTG ACT TAA TTC GA
core-28-30	TAA ACT GAT AGG CAC AGA CAA TAT AGA TAG ACT AA
core-69-24	AAA ATC TAA AGC ATC ACC ATA TCT GAC CCT GAA GA
core-73-31	TCG TGG GAG AGG CGG TTT ACC AGT GCA GAT ACG AGC AAC
core-29-77	AAA ATA AAC CAA CGA CCC TTC CAC ACG ACC AGT AAG TC
core-10-5	TTT CTC AAA ATC CCT CAG ACC AGA AAG GTT GAA GC
core-11-7	TTG TTT TCA CAC TAA AGA AAC AAC TGA A
core-75-33	GGG GAG AGA GTT GCA GCA AAA TCC CGA GAG GAT AG
core-22-67	TTA CCG AAG CCC TTT TAA ACA TTG AGT TAA GCA CTA ATA GAT TAT GCG A
core-12-52	TCA GCT TGC TTT CGA ACC ATC GCC CAC CAA ATT CAA
core-34-34	GCG AAA AAT CAG GTC GAA CAA GCA ATC AGA TA
core-15-58	AAG GTC ATA TGT CAG GTT AGA AAT A
core-8-48	TCA CCA TCT TTT CAT AAA TCG GCA AAC GCG AAT AAC TA
core-52-52	AAG GGT AGC TGA TAA ATT CAA GAA AAC AGT G
core-23-63	CTG CGA GGC GCA GAC GGC ATG TTA ATC GGC CGC CAG TT
core-10-15	TCG GAC CGT AAC ACC AAT GCC ATT TTG AAT TAC AA
core-46-42	TAA CGC ATC AAA CCT GTT AGA TAC AAG TT
core-64-60	AGC GCG CAT CGT AAC CGA TTG ACC GAG CGA GTC GC
core-54-14	AGA GCT GGA GCA AAC ACC TGA TTG CAA CAA ACC CAA AGA TCA
core-34-29	TCC CGG GGG TAC TTT TGC ATA GTA AAT AAC GCC AT

core-74-71	GCG GCC AGC TTG AGT GAA AAG TGT
core-58-54	AAA CTA ACG TCC GGG AGA ACC AAG TTA CAA AAC TG
core-100-23	GAT TGT GAT TGT GAT TGT TTT TTT TTT TGG GTA ACG CAA CTC TGG
core-87-34	GAT TGT GAT TGT GAT TGT TTT TTT TTT CAA AAT CGA ACG TGT ACT
core-101-8	GAT TGT GAT TGT GAT TGT TTT TTT TTT TAT ACA AGG CGT TAA CCC
core-86-2	GAT TGT GAT TGT GAT TGT TTT TTT TTT CAT TTT TGA CCG GAA TTT TCA GAG GTT T
core-94-14	GAT TGT GAT TGT GAT TGT TTT TTT TTT TGA GAG TGG TAG CTG GGA TCG ATA TTC G
core-81-28	GAT TGT GAT TGT GAT TGT TTT TTT TTT TGC CTA AGC ATT AAG TCA
core-88-46	GAT TGT GAT TGT GAT TGT TTT TTT TTT TTT TGC GTA AAG CTA ATT AAG CAT
core-95-63	GAT TGT GAT TGT GAT TGT TTT TTT TTT AAG AAA CAC TTA AAT CCT TTG CCC
core-83-30	ATT ACT GCA AGT GCA AAT TTT TTT TTT TCG GCC ATG ATT GCG AAT
core-98-25	ATT ACT GCA AGT GCA AAT TTT TTT TTT CGA GCT CAG GGT TTT GA
core-90-11	ATT ACT GCA AGT GCA AAT TTT TTT TTT GAG TAA TGG ATA AAT TAA
core-103-10	ATT ACT GCA AGT GCA AAT TTT TTT TTT TGG TTT GGA CAA AGT TT
core-97-4	ATT ACT GCA AGT GCA AAT TTT TTT TTT ACG CGC CTA CCG ACA TGG
core-104-62	ATT ACT GCA AGT GCA AAT TTT TTT TTT TGA GGG GCA CCG TG
core-91-18	ATT ACT GCA AGT GCA AAT TTT TTT TTT AAG AAA TAT ACT TCA GGT
core-82-31	ATT ACT GCA AGT GCA AAT TTT TTT TTT ATA AAT CGA ATC GTA GAC TGG AAA AAC CTA A
core-105-51	CAG TAT CAG TAT CAG TAT TTT TTT TTT TAT GTA ATT TAT CAG ACG CTG TGT A
core-96-27	CAG TAT CAG TAT CAG TAT TTT TTT TTT AAA GCC TTC GTA ATT CA
core-93-20	CAG TAT CAG TAT CAG TAT TTT TTT TTT TTG TTT GAG AAG GAG GAA
core-85-32	CAG TAT CAG TAT CAG TAT TTT TTT TTT CAC CGC CTC CGA AAC GAC
core-102-21	CAG TAT CAG TAT CAG TAT TTT TTT TTT CAT TCA GCG ACA GTC TTA
core-99-6	CAG TAT CAG TAT CAG TAT TTT TTT TTT ATT TTC GCT CAA CAC AGA
core-92-12	CAG TAT CAG TAT CAG TAT TTT TTT TTT CCG TTC TGA GAA AGT GAC AAC AGG TG
core-84-1	CAG TAT CAG TAT CAG TAT TTT TTT TTT CGC GTT TAT TAT AGT AG
core-122-77	TGG ACT TAT ACT TGG ACT TAT TTT TTT TTT ACT ATC AAA AAT AGT GTT
core-113-35	TGG ACT TAT ACT TGG ACT TAT TTT TTT TTT AGT ACC GAT AAG TAT CAG AAG AAT GAC C
core-109-65	TGG ACT TAT ACT TGG ACT TAT TTT TTT TTT GAT ATT CTG AAC GGG GGC CTC GCC
core-110-45	TGG ACT TAT ACT TGG ACT TAT TTT TTT TTT TAG TAA ATT TCA ACA AAG
core-108-61	TGG ACT TAT ACT TGG ACT TAT TTT TTT TTT ACA CTA ACG GAG ATT AAA
core-111-51	TGG ACT TAT ACT TGG ACT TAT TTT TTT TTT GTC GCT GCC GAC AAG CCG GAG AAT GCC T



core-52-107	AAT GAC TTG AGA AAC CAT TTT TTT TTG TAC ACA TCA TTG TAA TC
core-73-106	CGA GAA ACG ACA GTT ACT TTT TTT TTG TAC ACA TCA TTG TAA TC

**Table S2. Sequences of poly-thymine (pT) passivated strands.** Names denote both the function of the staple strand and its position according to the line numbers in Figure S1: [function- 5' position – 3' position].

Name	Poly-thymine passivated strands 5' → 3'
pT-21-22	TTT TTT TTT TTT TTT CTG ATA AAT TGT TGA CCA ACT TTG TTT TTT TTT TTT TTT
pT-37-40	ACT TTC CAA CAT TTT GAT TAG CTC AAC ATG TTT TAA ATT TTT TTT TTT TTT T
pT-45-8	TTT TTT TTT TTT TTT GGC GCG AGC TGA AGT TTC AGC GGA TTT TTT TTT TTT TTT
pT-27-28	TTT TTT TTT TTT TTT TAA TCA TTG TGA AAC GAA CTA TTT TTT TTT TTT TTT
pT-36-1	TTT TTT TTT TTT TTT AGA ACG GGT ATT CGG AAC CTA TTA TTT TTT TTT TTT TTT
pT-11-12	TTT TTT TTT TTT TTT AAG GCT CCA AAA AAC AGC TTG ATA TTT TTT TTT TTT TTT
pT-74-73	TTT TTT TTT TTT TTT GTA AGA ATA CGT GCC CTA AAA CAT TTT TTT TTT TTT TTT
pT-52-51	TTT TTT TTT TTT TTT TTT TTT AAT CCT TAG AAT TTT TTT TTT TTT TTT
pT-79-76	TTT TTT TTT TTT TTT GTG TTG TTC CAG TTT GCC CGA GAG CAG GCG AAG C
pT-38-37	TTT GTC TTT CCT TAT CAT TCC ATT TTT TTT TTT TTT T
pT-6-43	TTT TTT TTT TTT TTT CGC CAG CAT CCA TAT TTA TTT TTT TTT TTT TTT
pT-0-34	TTT TTT TTT TTT TTT TTC TGA AAC ATG AAA GTA TAG AAC GCC CAA
pT-37-36	TTT TTT TTT TTT TTT TTA AGA GGA AGC CCG AGA TT
pT-71-72	TTT TTT TTT TTT TTT CAC AAT TCC ACA TGC GCT CAC TTT TTT TTT TTT TTT
pT-34-33	TTT TTT TTT TTT TTT TCA TTA CCG CGC GAG GCG TTT TAG TTT TTT TTT TTT TTT
pT-56-16	TTT TTT TTT TTT TTT ACA GTA CCT TTT ACA TAG ATG AAA ATC
pT-18-59	TTT TTT TTT TTT TTT TGT TAG CAA CCT ACC ATA TTT TTT TTT TTT TTT
pT-4-5	TCC ATG GAA AGC GCA GTC TTT TTT TTT TTT TTT T
pT-61-20	TTT TTT TTT TTT TTT TTT CAT CAA CAT TTG TAT CAT CGC TTT TTT TTT TTT TTT
pT-7-7	TTT TTT TTT TTT TTT CTT TCC AGA CGT
pT-18-19	AGA TCC TTA TTA CGC AGT ATT TTT TTT TTT TTT T
pT-61-62	TGT GTA ATG GGA TAG GTC ACG TTT TTT TTT TTT TTT T
pT-41-4	TTT TTT TTT TTT TTT TAT GCA ACT AAA TCG TCA CCA GTA TTT TTT TTT TTT TTT
pT-3-38	TTT TTT TTT TTT TTT AGA ACC GCC ATT AGA GAG TTT TTT TTT TTT TTT
pT-17-59	TTT TTT TTT TTT TTT TTG AGG ACT AAA GAC TTT TCA CCA ACT TTT
pT-20-61	TTT TTT TTT TTT TTT AGA AGG AAA TGA TTA TCA TTT TTT TTT TTT TTT
pT-30-29	TTT TTT TTT TTT TTT ATC CTG AAT CTT ACA GCC ATA TTA TTT TTT TTT TTT TTT

pT-16-58	ACG GAT AAT CCG TTA ATA TTT TGT TAA AAT TTT TTT TTT TTT TT
pT-2-36	TTT TTT TTT TTT TTT GGG GTC AGT GCC TTG AGT ACC TAT TTA AAC
pT-51-52	TTT TTT TTT TTT TTT TAT TTT AAA TGC ACA GTC AAA TCA TTT TTT TTT TTT TTT
pT-43-6	TTT TTT TTT TTT TTT TAG ATT TAG TTT AAG TTT TGT CGT TTT TTT TTT TTT TTT
pT-58-18	TTT TTT TTT TTT TTT TCA AAA TTA TTT GCA CGT TAG AAA CGT
pT-39-3	TTT TTT TTT TTT TTT TAC CTT TAA TTG CTC CGG TCA GGA CCC
pT-35-34	TTT TTT TTT TTT TTT CTT TAA ACA GTT CAG AGA A
pT-76-75	TTT TTT TTT TTT TTT AGA TTC ACC AGT TGA CCT GAA AGC TTT TTT TTT TTT TTT
pT-13-14	TTT TTT TTT TTT TTT CCG ATA GTT GCG AGG CTT GCA GGG TTT TTT TTT TTT TTT
pT-49-50	TTT TTT TTT TTT TTT CAT TAT GAC CCT AGA ACC CTC ATA TTT TTT TTT TTT TTT
pT-13-15	AAT ACG GAA AAT TGA GGG AGG GAA GGT TTT TTT TTT TTT TT
pT-10-47	TTT TTT TTT TTT TTT GCG TCA GAC ATA TAT TTT TTT TTT TTT TTT TTT
pT-48-50	TTT TTT TTT TTT TTT ACC TCC GGC TTA GGT TAG AGA CTC ATA
pT-24-23	TTT TTT TTT TTT TTT ATT GAG CGC AAG AAA CAA TTT TTT TTT TTT TTT
pT-63-64	TTT TTT TTT TTT TTT TGG TGT AGA TGG CAG CTT TCC GGC TTT TTT TTT TTT TTT
pT-4-41	TTT TTT TTT TTT TTT CTG AAT TTA CAG ACG ACG TTT TTT TTT TTT TTT
pT-9-47	TTT TTT TTT TTT TTT GTG AGA ATA GAA AGG AAC AGT TGA AAT TAG
pT-36-0	GCA TCG AGA GCT CAG TAC CAG GCG GAT TTT TTT TTT TTT TT
pT-12-11	TTT TTT TTT TTT TTT CAC CAT TAC TTG CCT TTA TTT TTT TTT TTT TTT
pT-31-32	TTT TTT TTT TTT TTT TTA CGA GGC AAA AGA AGT TTT TTT TTT TTT TTT
pT-36-35	CAA TTT ATT TTC ATC GTA GGA ATT TTT TTT TTT TTT T
pT-62-63	TTT TTT TTT TTT TTT GTT TGA GTA ACA TTA TGT TA
pT-25-26	TTT TTT TTT TTT TTT AAC GTA ACA AAG TAA TTT CAA CTT TTT TTT TTT TTT TTT
pT-72-71	TTT TTT TTT TTT TTT CGC CAT TAA AAA AAC ACC GCC TTT TTT TTT TTT TTT
pT-22-21	TTT TTT TTT TTT TTT TGA AAT AGC AAA GTT ACC TTT TTT TTT TTT TTT
pT-3-2	TCA CAG AAC CGC CAC CCT CTT TTT TTT TTT TTT T
pT-68-67	TTT TTT TTT TTT TTT ATC AAA CCC GGT TAT CTA TTT TTT TTT TTT TTT
pT-6-7	CAG GCC ACC ACC AGA GCC GCT TTT TTT TTT TTT TT
pT-8-9	CCT CAC CGG AAC CAG AGC CTT TTT TTT TTT TTT T
pT-16-57	TTT TTT TTT TTT TTT TTT TGT CAC TAT ACA GTA TTT TTT TTT TTT TTT
pT-54-55	TAC TCG CGC AGA GGC GAA TTT TTT TTT TTT TTT T
pT-1-36	TTT TTT TTT TTT TTT TAA GTG CCG TCA AAA AGA TTT TTT TTT TTT TTT
pT-66-65	TTT TTT TTT TTT TTT AAA TAT CTT GGA TTT AGA TTT TTT TTT TTT TTT
pT-57-16	TTT TTT TTT TTT TTT TGT ACC CCG GTT GCT ACA GAG GCT TTT TTT TTT TTT TTT
pT-4-42	GTT GTA CGG TTC CCA ATT CTG CGA ACG AGT TTT TTT TTT TTT TT

pT-55-56	TTT TTT TTT TTT TTA GGC TAT CAG GTA ACT AGC ATG TCA ATC ATA TTT TTT TTT TTT TT
pT-59-18	TTT TTT TTT TTT TTT TTC GCA TTA AAT CTA AAA CGA AAG TTT TTT TTT TTT TTT
pT-64-63	TTT TTT TTT TTT TTT AGT ATT AGA ATT TTA AAA TTT TTT TTT TTT TTT
pT-33-34	TTT TTT TTT TTT TTT TTT GCC AGA CCT CAA ATG TTT TTT TTT TTT TTT
pT-40-4	TTT TTT TTT TTT TTT ACA ATA AAC AAC ATG TTT CTG TCC CGT
pT-15-16	TTT TTT TTT TTT TTT AGT TAA AGG CCG AGC A
pT-8-45	TTT TTT TTT TTT TTT ACC ACC GGA CAT AAT TAC TTT TTT TTT TTT TTT
pT-38-3	TTT TTT TTT TTT TTT TAA TAT CCC ATC ATA AGT TTT AAC TTT TTT TTT TTT TTT
pT-23-24	TTT TTT TTT TTT TTT AAA GAG GAC AGA ATT ACC CAA ATC TTT TTT TTT TTT TTT
pT-47-10	TTT TTT TTT TTT TTT CAA GGC AAA GAA ATC TCC AAA AAA TTT TTT TTT TTT TTT
pT-73-74	TTT TTT TTT TTT TTT TGC CCG CTT GGG CGC CAG TTT TTT TTT TTT TTT
pT-47-48	CAA AAA TCG GTT GTA CCA AAA ATT TTT TTT TTT TTT T
pT-65-66	TTT TTT TTT TTT TTT ACC GCT TCT GGT TTC GCT ATT ACG TTT TTT TTT TTT TTT
pT-50-49	TTT TTT TTT TTT TTT CCT TGA AAA ACC TTT TTA TTT TTT TTT TTT TTT
pT-16-17	AAT CCA CGG AAT AAG TTT ATT TTT TTT TTT TTT T
pT-29-30	TTT TTT TTT TTT TTT ACG GAA CAA CAA AAG GAA TTT TTT TTT TTT TTT
pT-42-6	TTT TTT TTT TTT TTT ACA ACG CCA ACA TGT AAG AAT CGT GA
pT-32-31	TTT TTT TTT TTT TTT CGA ACC TCC CGA AGC TAC AAT TTT TTT TTT TTT TTT TTT
pT-43-44	ATT TAG CTA TAT TTT CAT TTG GTT TTT TTT TTT TTT T
pT-19-19	TTT TTT TTT TTT TTT AGG CAA AAG AAT
pT-5-43	TTT TTT TTT TTT TTT CAA ACT ACA ACG CCT GTA GCG ATC TAG ACC
pT-77-78	TTT TTT TTT TTT TTT TTT GCC CCA TAG GGT TGA TTT TTT TTT TTT TTT
pT-44-8	TTT TTT TTT TTT TTT TAG AAA AAG CCT GTT TCC GGA ATA CCG
pT-34-79	TAG AAA ACC GTC TAT CAA GCC ATT TTT TTT TTT TTT T
pT-46-10	TTT TTT TTT TTT TTT AGT TAA TTT CAT CTT CTT TTC AAT GT
pT-70-69	TTT TTT TTT TTT TTT TGC AAC AGT ACC TCA AAT TTT TTT TTT TTT TTT
pT-40-39	CTA AAG TCC TGA ACA AGA AAA ATT TTT TTT TTT TTT T
pT-54-53	TTT TTT TTT TTT TTT TAT TCA TTT TGA ATT ACC TTT TTT TTT TTT TTT
pT-60-61	TTT TTT TTT TTT TTT GAT GAT GGC AAT TCA TAT A
pT-75-76	TTT TTT TTT TTT TTT GGT GGT TTT CCA CGC TGG TTT TTT TTT TTT TTT
pT-78-77	TTT TTT TTT TTT TTT TTG CAA CAG GAA ATT TAC ATT GGC TTT TTT TTT TTT TTT
pT-53-54	TTT TTT TTT TTT TTT CCA TCA ATA TGA AGA GAT CTA CAA TTT TTT TTT TTT TTT
pT-26-25	TTT TTT TTT TTT TTT ATA ACA TAA CAG AGG GTA TTT TTT TTT TTT TTT
pT-45-46	GTG ATC CAA TAA ATC ATA CAG GTT TTT TTT TTT TTT T

pT-28-27	TTT TTT TTT TTT TTT TTT ATC CCA ATC ACA GAG AGA TTT TTT TTT TTT TTT
pT-59-60	GTT TGG CCT TCC TGT AGC CAG CTT TTT TTT TTT TTT T
pT-69-70	TTT TTT TTT TTT TTT TTG CAT GCC TGC TTG TTA TCC GCT TTT TTT TTT TTT TTT
pT-67-68	TTT TTT TTT TTT TTT CCA GCT GGC GAA CCA GTG CCA AGC TTT TTT TTT TTT TTT
pT-14-13	TTT TTT TTT TTT TTT TAA ATA TTG CAC CAG TAG TTT TTT TTT TTT TTT

**Table S3. Sequences of connector overhangs for 8 connectors on left side of origami.** Names denote the position of the connector in the folding map in Figure S1, with the line number being where the overhang protrudes from the origami (here: 3’).

<b>Connector overhangs, left side, 8 connectors</b>	
<b>Name</b>	<b>Sequence 5’→3’</b>
connector-left-72	TTT TTT CAC AAT TCC ACA TGC GCT CAC TTT TTT TAG CTA CGT ATC TTC CAT
connector-left-68	TTT TTT CCA GCT GGC GAA CCA GTG CCA AGC TTT TTT TAG CTA CGT ATC TTC CAT
connector-left-64	TTT TTT TGG TGT AGA TGG CAG CTT TCC GGC TTT TTT TAG CTA CGT ATC TTC CAT
connector-left-40	ACT TTC CAA CAT TTT GAT TAG CTC AAC ATG TTT TAA A TT TTT TAG CTA CGT ATC TTC CAT
connector-left-44	ATT TAG CTA TAT TTT CAT TTG G TTT TTT TAG CTA CGT ATC TTC CAT
connector-left-48	CAA AAA TCG GTT GTA CCA AAA A TTT TTT TAG CTA CGT ATC TTC CAT
connector-left-56	TTT TTT AGG CTA TCA GGT AAC TAG CAT GTA ATC ATA TTT TTT TAG CTA CGT ATC TTC CAT
connector-left-78	TTT TTT TTT GCC CCA TAG GGT TGA TTT TTT TAG CTA CGT ATC TTC CAT

**Table S4. Sequences of connector overhangs for 8 connectors on right side of origami.** Names denote the position of the connector in the folding map in Figure S1, with the line number being where the overhang protrudes from the origami (here: 5').

<b>Connector overhangs, right side, 8 connectors</b>	
<b>Name</b>	<b>Sequence 5'→3'</b>
connector-right-72	TACCTTCTATGCATCGATTTTTTTTCGCCATTAACAAAAACACCGCCTTTTTTTTTTTTTTTT
connector-right-68	TACCTTCTATGCATCGATTTTTTTATCAAACCCGGTTATCTATTTTTTTTTTTTTTTT
connector-right-64	TACCTTCTATGCATCGATTTTTTTAGTATTAGAATTTTAAAATTTTTTTTTTTTTTTT
connector-right-40	TACCTTCTATGCATCGATTTTTTTACAATAACAACATGTTTCTGTCCCGT
connector-right-44	TACCTTCTATGCATCGATTTTTTTAGAAAAAGCCTGTTTCCGGAATACCG
connector-right-48	TACCTTCTATGCATCGATTTTTTTACCTCCGGCTTAGGTTAGAGACTCATA
connector-right-56	TACCTTCTATGCATCGATTTTTTTACAGTACCTTTTACATAGATGAAAATC
connector-right-78	TACCTTCTATGCATCGATTTTTTTTGCAACAGGAAATTTACATTGGCTTTTTTTTTTTT

**Table S5. Sequences of connector overhangs for 16 connectors on left side of origami.** Names denote the position of the connector in the folding map in Figure S1, with the line number being where the overhang protrudes from the origami (here: 3').

<b>Connector overhangs, left side, 16 connectors</b>	
<b>Name</b>	<b>Sequence 5'→3'</b>
connector-left-0	GCATCGAGAGCTCAGTACCAGGCGGATTTTTTTTAGCTACGTATCTTCCAT
connector-left-14	TTTTTTTTTCCGATAGTTGCGAGGCTTGCAGGGTTTTTTTAGCTACGTATCTTCCAT

connector-left-8	TTTTTTTTTGGCGCGAGCTGAAGTTTCAGCGGATTTTTTTAGCTACGTATCTTCCAT
connector-left-4	TTTTTTTTTTATGCAACTAAATCGTCACCAGTATTTTTTTAGCTACGTATCTTCCAT
connector-left-30	TTTTTTTTTACGGAACAACAAAAGGAATTTTTTTAGCTACGTATCTTCCAT
connector-left-26	TTTTTTTTTAAACGTAACAAAGTAATTTCAACTTTTTTTTTAGCTACGTATCTTCCAT
connector-left-22	TTTTTTTTTCTGATAAATTGTTGACCAACTTTGTTTTTTTTAGCTACGTATCTTCCAT
connector-left-18	TTTTTTTTTTTCGCATTAATCTAAAACGAAAGTTTTTTTAGCTACGTATCTTCCAT

**Table S6. Sequences of connector overhangs for 16 connectors on right side of origami.** Names denote the position of the connector in the folding map in Figure S1, with the line number being where the overhang protrudes from the origami (here: 5').

<b>Connector overhangs, right side, 16 connectors</b>	
<b>Name</b>	<b>Sequence 5' → 3'</b>
connector-right-0	TACCTTCTATGCATCGATTTTTTTTTCTGAAACATGAAAGTATAGAACGCCCAA
connector-right-14	TACCTTCTATGCATCGATTTTTTTTAAATATTGCACCAGTAGTTTTTTTTT
connector-right-8	TACCTTCTATGCATCGATTTTTTTACCACCGGACATAAATACTTTTTTTTT
connector-right-4	TACCTTCTATGCATCGATTTTTTTCTGAATTTACAGACGACGTTTTTTTTT
connector-right-30	TACCTTCTATGCATCGATTTTTTTATCCTGAATCTTACAGCCATATTATTTTTTTTT
connector-right-26	TACCTTCTATGCATCGATTTTTTTATAACATAACAGAGGGTATTTTTTTTTT
connector-right-22	TACCTTCTATGCATCGATTTTTTTTTGAAATAGCAAAGTTACCTTTTTTTTTT
connector-right-18	TACCTTCTATGCATCGATTTTTTTGTTAGCAACCTACCATATTTTTTTTTT

**Table S7. Sequences of connector overhangs for 24 connectors on left side of origami.** Names denote the position of the connector in the folding map in Figure S1, with the line number being where the overhang protrudes from the origami (here: 3').

<b>Connector overhangs, left side, 24 connectors</b>	
<b>Name</b>	<b>Sequence 5'→3'</b>
connector-left-38	TTT TTT TTT TTT TTT AGA ACC GCC ATT AGA GAG TTT TTT TAG CTA CGT ATC TTC CAT
connector-left-34	TTT TTT TTT TTT TTT TTT GCC AGA CCT CAA ATG TTT TTT TAG CTA CGT ATC TTC CAT
connector-left-32	TTT TTT TTT TTT TTT TTA CGA GGC AAA AGA AGT TTT TTT TAG CTA CGT ATC TTC CAT
connector-left-76	TTT TTT TTT TTT TTT GGT GGT TTT CCA CGC TGG TTT TTT TAG CTA CGT ATC TTC CAT
connector-left-50	TTT TTT TTT TTT TTT CAT TAT GAC CCT AGA ACC CTC ATA TTT TTT TAG CTA CGT ATC TTC CAT
connector-left-52	TTT TTT TTT TTT TTT TAT TTT AAA TGC ACA GTC AAA TCA TTT TTT TAG CTA CGT ATC TTC CAT
connector-left-58	ACG GAT AAT CCG TTA ATA TTT TGT TAA AAT TTT TTT TAG CTA CGT ATC TTC CAT
connector-left-60	GTT TGG CCT TCC TGT AGC CAG C TTT TTT TAG CTA CGT ATC TTC CAT

**Table S8. Sequences of connector overhangs for 24 connectors on right side of origami.** Names denote the position of the connector in the folding map in Figure S1, with the line number being where the overhang protrudes from the origami (here: 5').

<b>Connector overhangs, right side, 24 connectors</b>	
<b>Name</b>	<b>Sequence 5'→3'</b>
connector-right-38	TAC CTT CTA TGC ATC GAT TTT TTT TAA TAT CCC ATC ATA AGT TTT AAC TTT TTT TTT TTT TTT
connector-right-34	TAC CTT CTA TGC ATC GAT TTT TTT TCA TTA CCG CGC GAG GCG TTT TAG TTT TTT TTT TTT TTT
connector-right-32	TAC CTT CTA TGC ATC GAT TTT TTT CGA ACC TCC CGA AGC TAC AAT TTT TTT TTT TTT TTT TTT

connector-right-76	TAC CTT CTA TGC ATC GAT TTT TTT AGA TTC ACC AGT TGA CCT GAA AGC TTT TTT TTT TTT TTT
connector-right-50	TAC CTT CTA TGC ATC GAT TTT TTT CCT TGA AAA ACC TTT TTA TTT TTT TTT TTT TTT
connector-right-52	TAC CTT CTA TGC ATC GAT TTT TTT TTT TTT AAT CCT TAG AAT TTT TTT TTT TTT TTT
connector-right-58	TAC CTT CTA TGC ATC GAT TTT TTT TCA AAA TTA TTT GCA CGT TAG AAA CGT
connector-right-60	TAC CTT CTA TGC ATC GAT TTT TTT GAT GAT GGC AAT TCA TAT A

**Table S9. Sequences of fluorophore modified connector overhangs.** Names denote the fluorophore modification and position of the connector in the folding map in Figure S1, with the line number being where the overhang protrudes from the origami.

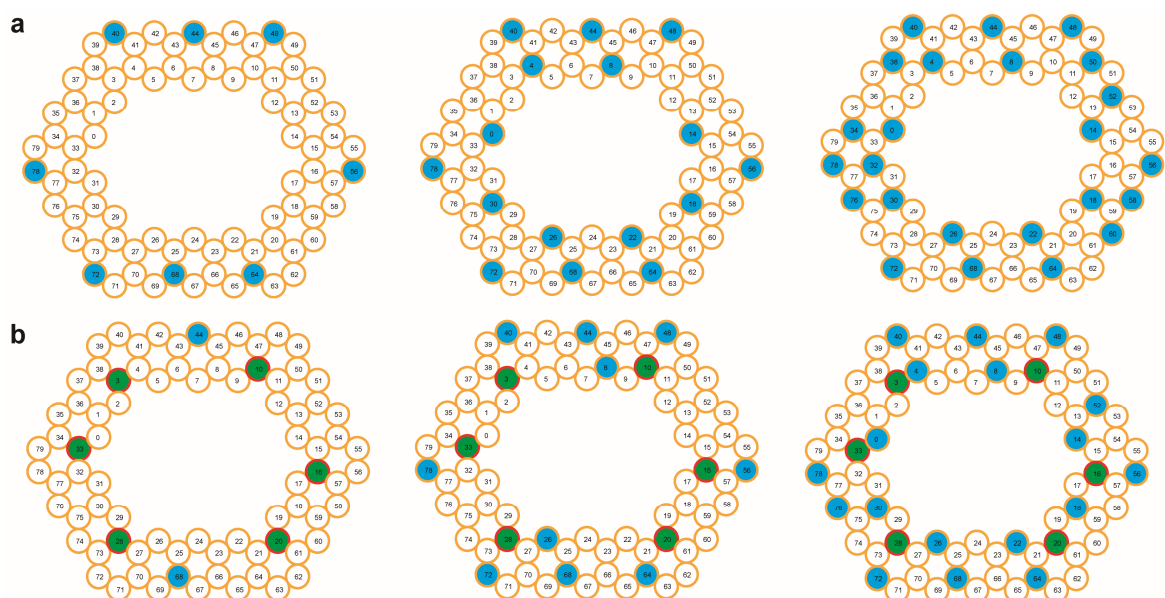
<b>Connector overhangs, fluorophore modified</b>	
<b>Name</b>	<b>Sequence 5'→3'</b>
connector-left-28-AF568	TTT TTT TAA TCA TTG TGA AAC GAA CTA TTT TTT TAG CTA CGT ATC TTC CAT-AF568
connector-right-28-AF647	AF647-TAC CTT CTA TGC ATC GAT TTT TTT TTTATCCCAATCACAGAGAGA TTT TTT
connector-right-10-AF647	AF647-TAC CTT CTA TGC ATC GAT TTT TTT GCG TCA GAC ATA TAT TTT TTT TTT
connector-left-10-AF568	TTT TTT CAA GGC AAA GAA ATC TCC AAA AAA TTT TTT TAG CTA CGT ATC TTC CAT-AF568
connector-left-3-AF568	AF568-TAC CTT CTA TGC ATC GAT TTT TTT AGA ACC GCC ATT AGA GAG TTT TTT
connector-right-3-AF647	T TAA TAT CCC ATC ATA AGT TTT AAC TTT TTT TAG CTA CGT ATC TTC CAT-AF647
connector-left-20-AF568	T TTT CAT CAA CAT TTG TAT CAT CGC TTT TTT TAG CTA CGT ATC TTC CAT-AF568
connector-right-20-AF647	AF647-TAC CTT CTA TGC ATC GAT TTT TTT AGA AGG AAA TGA TTA TCA TTT TTT
connector-right-33-AF647	T TCA TTA CCG CGC GAG GCG TTT TAG TTT TTT TAG CTA CGT ATC TTC CAT-AF647



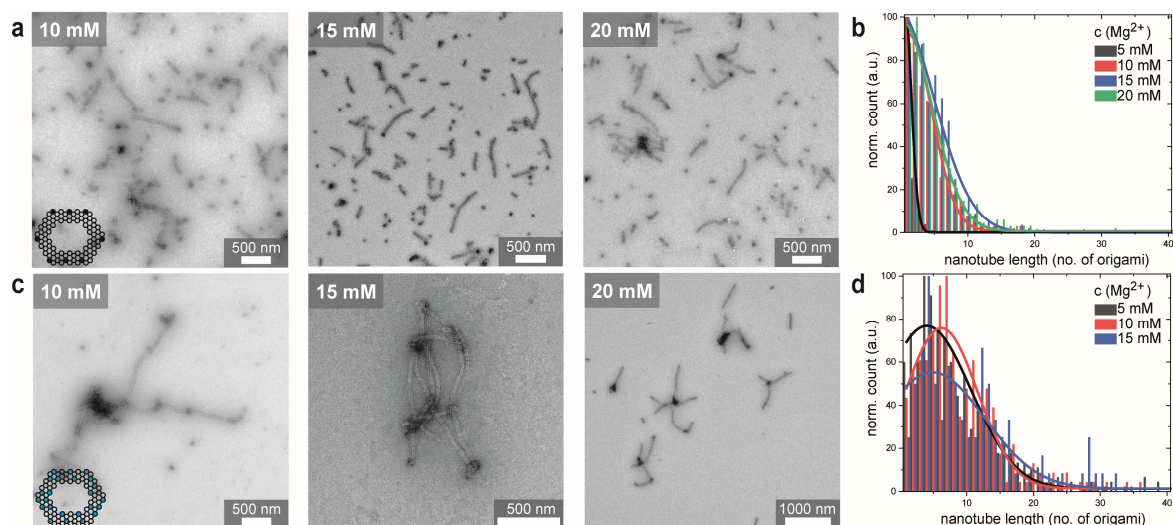
connector-left-33-AF568	AF568-TAC CTT CTA TGC ATC GAT TTT TTT TTT GCC AGA CCT CAA ATG TTT TTT
connector-left-16-AF568	T TGT ACC CCG GTT GCT ACA GAG GCT TTT TTT TAG CTA CGT ATC TTC CAT-AF568
connector-right-16-AF647	AF647-TAC CTT CTA TGC ATC GAT TTT TTT TTT TGT CAC TAT ACA GTA TTT TTT

**Table S10. Sequences of fuel and antifuel strands.**

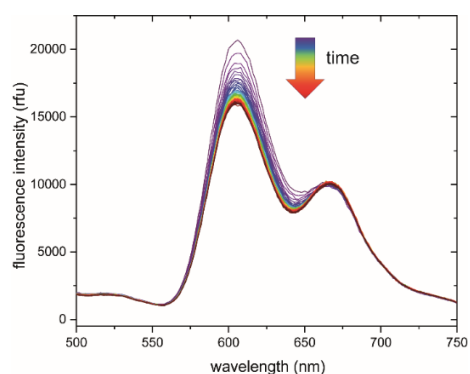
Fuel and antifuel strands		
Name	Sequence 5'→3'	Hybridization length
5 nb fuel	AGGTAATGGA	5 nb
8 nb fuel	AGAAGGTAATGGAAGA	8 nb
11 nb fuel-toehold	CATAGAAGGTAATGGAAGATAC AAT GAA ATT TAG GTA	11 nb + 15 nb toehold
13 nb fuel	TGCATAGAAGGTAATGGAAGATACGT	13 nb
antifuel	TAC CTA AAT TTC ATT GTA TCT TCC ATT ACC TTC TAT G	37 nb



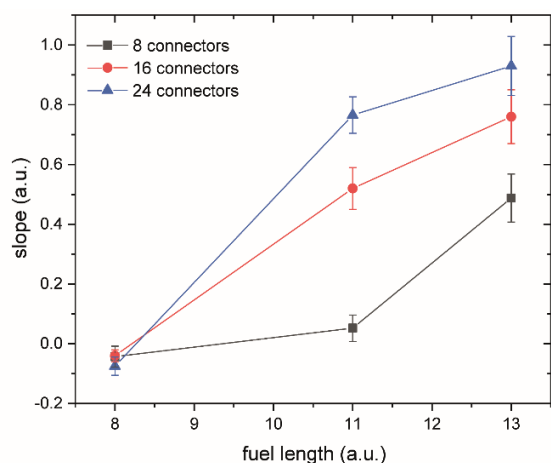
**Figure S2. Connector strand positions in the 3D-DNA-NC.** (a) Connector strand positions for 8, 16 and 24 connectors without any modifications. (b) Connector strand positions for 8, 16 and 24 connectors with 6 fluorophore modified connectors per side. Connector positions were adapted so that in case of a horizontal turn of 180° during annealing, FRET pairs can still align. The numbers in the cross section correlate with the line numbers in Figure S1.



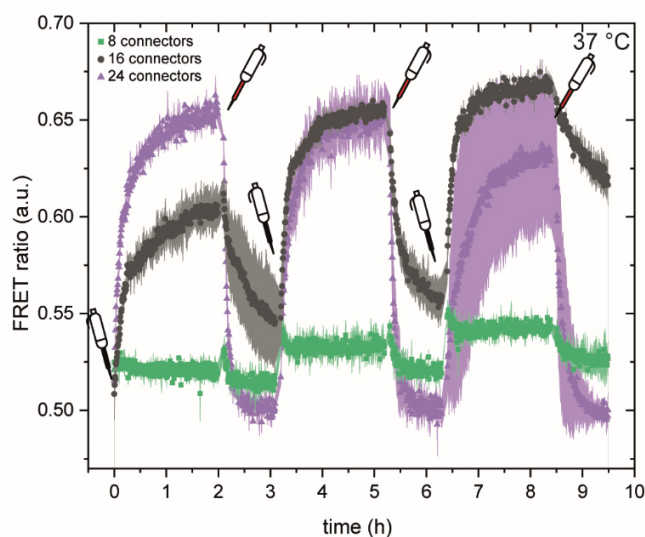
**Figure S3. TEM characterization of higher Mg<sup>2+</sup> concentration for *in situ* fibrillation with 8 and 24 connectors.** (a) TEM images for nanotubes with 8 connectors at 10, 15 and 20 mM Mg<sup>2+</sup>. (b) Statistical TEM image analysis of nanotube length distribution for *in situ* formed nanotubes with 8 connectors. (c) TEM images for nanotubes with 24 connectors at 10, 15 and 20 mM Mg<sup>2+</sup>. (d) Statistical TEM image analysis of nanotube length distribution for *in situ* formed nanotubes with 24 connectors. The sample with 20 mM Mg<sup>2+</sup> showed strong aggregation of nanotubes and was therefore not evaluated statistically. All nanotubes are polymerized with 22 nb fuel. All nanotubes were formed *in situ* at a total concentration of 20 nM, purified and were further incubated for 2 days at 37 °C.



**Figure S4. Reference spectrum for FRET.** Fluorescence spectrum of polymerization of 24 connector 3D-DNA-NC with 22 nb fuel at 25 °C and 10 nM.



**Figure S5. Initial slope and FRET ratio increase for time-resolved FRET measurements.** Initial slope for polymerization with different connectors and different hybridization lengths at 37 °C. Slope is calculated from linear fitting of the first 4 min of the time-resolved curves.



**Figure S6. In situ monitoring of reversible nanotube polymerization at 37 °C by FRET.** Time-resolved FRET ratio showing repeated addition of fuel and antifuel at 37 °C for different connector densities. The measurements are an average of two, the shaded area is the standard deviation. Origami concentrations are 10 nM at 5 mM  $Mg^{2+}$ .

### Note S1: Adjustments of brightness and contrast in images

Figure 4a bottom left: brightness reduced by 20 %, contrast increased by 20 %

Figure 4a top right: brightness reduced by 20 %, contrast increased by 20 %