

## 没食子酸改性竹粉的制备及抑菌性能

叶金枝<sup>1</sup>, 徐涓<sup>2</sup>, 杨静<sup>2</sup>, 杨海艳<sup>2</sup>, 王大伟<sup>2</sup>, 史正军<sup>1,2</sup>

(1. 西南林业大学 国家林业和草原局丛生竹工程技术研究中心, 云南 昆明 650224; 2. 西南林业大学 西南地区林业生物质资源高效利用国家林业和草原局重点实验室, 云南 昆明 650224)

**摘要:** 【目的】以龙竹 *Dendrocalamus giganteus* 竹粉为原料, 采用酯化反应制备没食子酸改性竹材, 并探究没食子酸对竹材抑菌性能的影响。【方法】通过傅里叶红外光谱仪、X 射线衍射仪、扫描电子显微镜和热重分析对改性竹粉特性进行表征, 采用振荡法评估改性竹粉的抑菌性能。【结果】没食子酸可以与竹粉形成接枝共聚物, 并在竹纤维束表面形成一层包裹物, 从而使其表面变得更加光滑; 没食子酸改性后, 竹粉的热稳定性提高约 40 °C, 对大肠埃希菌 *Escherichia coli* 抑制率从 30.70% 提高到 93.24%, 对金黄色葡萄球菌 *Staphylococcus aureus* 抑制率从 32.18% 提高到 75.29%。【结论】没食子酸改性可明显提高龙竹竹粉对革兰氏阴性菌和革兰氏阳性菌的抑制能力, 该方法为竹材抑菌性能改良的有效方法。图 8 参 26

**关键词:** 龙竹; 没食子酸; 改性; 抑菌

中图分类号: TQ351 文献标志码: A 文章编号: 2095-0756(2023)06-1333-08

## Preparation and antibacterial properties of gallic acid modified bamboo powder

YE Jinzhi<sup>1</sup>, XU Juan<sup>2</sup>, YANG Jing<sup>2</sup>, YANG Haiyan<sup>2</sup>, WANG Dawei<sup>2</sup>, SHI Zhengjun<sup>1,2</sup>

(1. Sympodial Bamboos Technological and Engineering Research Center of National Forestry and Grassland Administration, Southwest Forestry University, Kunming 650224, Yunnan, China; 2. Key Laboratory of State Forestry and Grassland Administration on Highly-Efficient Utilization of Forestry Biomass Resources in Southwest China, Southwest Forestry University, Kunming 650224, Yunnan, China)

**Abstract:** [Objective] This study, with gallic acid modified *Dendrocalamus giganteus* (DG) prepared by esterification reaction, is aimed to investigate the effect of gallic acid (GA) on antibacterial performance of DG. [Method] The modified products (DG-GA) were characterized by Fourier transform infrared spectrometer, X-ray diffractometer, scanning electron microscope and thermogravimetric analysis before the antibacterial tests were performed by shaking method after modification. [Result] Gallic acid formed graft copolymer with bamboo powder successfully with a layer of coating formed on the surface of bamboo fiber bundle, making the surface become smoother. After gallic acid modification, the thermal stability of bamboo powder increased by about 40 °C, the inhibition rate against *Escherichia coli* increased from 30.70% to 93.24%, and the inhibition rate against *Staphylococcus aureus* increased from 32.18% to 75.29%. [Conclusion] The modification of gallic acid can obviously improve the inhibition ability of bamboo powder against gram-negative and gram-positive bacteria, making it an effective method to improve the antibacterial property of bamboo. [Ch, 8 fig. 26 ref.]

收稿日期: 2022-11-23; 修回日期: 2022-12-30

基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (31971741)

作者简介: 叶金枝 (ORCID: 0009-0008-0072-8161), 从事生物质化学品与材料研究。E-mail: yejinzhi1208@163.com。通信作者: 史正军 (ORCID: 0000-0003-4682-2010), 博士, 教授, 从事生物质组分的清洁拆解和高效利用研究。E-mail: shizhengjun1979@swfu.edu.cn

**Key words:** *Dendrocalamus giganteus*; gallic acid; modification; antibacterial

竹材因孔隙层次多,含有丰富的多糖、蛋白质和水分等营养物质,极易受微生物侵染<sup>[1-2]</sup>。因此,通过技术手段改良竹材以增强竹材的抑菌性能尤为重要<sup>[3]</sup>。目前常用的木材、竹材抑菌改性剂有无机抑菌剂和有机抑菌剂2类<sup>[4]</sup>。无机抑菌剂与纤维之间是物理吸附,相互作用力弱,容易流失;有机抑菌剂虽能与纤维形成化学联接,却容易对环境造成污染,使微生物产生抗药性。植物多酚是天然植物原料中的有效成分,因其种类繁多、生产量大、能抗炎抑菌而备受关注<sup>[5]</sup>。天然多酚类化合物没食子酸能通过接触微生物造成细胞膜局部破裂成孔,破坏细胞膜完整性,使得细胞膜内物质泄漏,进而杀死细胞<sup>[6]</sup>,因此,近年来被广泛应用于改良材料的抑菌性能。ZHANG等<sup>[7]</sup>和ZARANDONA等<sup>[8]</sup>使用没食子酸制备的乙酰化果胶和壳聚糖膜均表现出优异的抑菌效果。龙竹 *Dendrocalamus giganteus* 是滇东南地区广泛分布的特色大型丛生竹材,常被应用于西南少数民族建筑和家具制品,但其抗生物侵害能力不足的特性严重影响了其使用周期和产品质量<sup>[9]</sup>。本研究基于竹材细胞壁组分多羟基特性和没食子酸的天然抑菌活性,用没食子酸改性龙竹竹粉,并对改性竹粉的结构特性和抑菌性能进行分析表征,可为发展植物源竹材绿色防护技术提供方法借鉴和理论支撑。

## 1 材料与方 法

### 1.1 材 料

供试竹材为云南省临沧市沧源县3年生无腐朽无霉变龙竹。供试菌种大肠埃希菌 *Escherichia coli* (革兰氏阴性细菌)和金黄色葡萄球菌 *Staphylococcus aureus* (革兰氏阳性细菌)购自北京保藏生物科技有限公司。

### 1.2 方 法

1.2.1 龙竹预处理 将龙竹去节,去除竹青竹黄,劈成竹片,用粉碎机粉碎后过40~60目筛,将该原料记作DG;用苯醇抽提(体积比为2:1)6h做脱蜡处理,放在60℃的烘箱内干燥备用,抽提物料记作DG-E;称取DG-E物料10.00g,加入质量浓度为5%的氢氧化钠溶液,固液比为1:20,在80℃的恒温水浴锅内磁力搅拌回流2h,用蒸馏水洗涤至中性,冷冻干燥,制备得到碱处理的竹粉,碱处理物料记作DG-A。

1.2.2 龙竹改性处理 龙竹改性方法在文献[10]的基础上略有改动:称取10.00g没食子酸(GA)于烧杯中,加入100mL N,N-二甲基甲酰胺(DMF),搅拌完全溶解;加入DG-A 3.50g、1-乙基-(3-二甲氨基丙基)碳二亚胺盐酸盐(EDC) 12.00g和4-二甲氨基吡啶(DMAP) 1.45g;水浴搅拌反应48h,反应温度为60℃,待反应结束后用蒸馏水和乙醇反复洗涤烘干备用,得到的物料标记为DG-GA。

1.2.3 菌液浓度测定及配制 参考GB/T 20944.3—2008<sup>[11]</sup>略有改动制备菌液。将第3代菌液采用10倍稀释法稀释到合适倍数后,取50μL涂布,培养24h观察,确定菌液浓度达 $1 \times 10^{12}$ ~ $5 \times 10^{12}$  CFU·L<sup>-1</sup>,菌液分别记作SA-1和EC-1。将SA-1和EC-1菌液用10倍稀释法稀释4次,使菌液浓度达 $3 \times 10^8$ ~ $4 \times 10^8$  CFU·L<sup>-1</sup>,分别记作SA-2和EC-2,作为预接种菌液。

### 1.3 预处理前后及改性后的性能表征

1.3.1 可及度测定 使用直接红染料(Direct red 28, DR28)对DG、DG-E、DG-A进行可及度测定<sup>[12]</sup>。称取0.1g待测样品与10mL不同质量浓度的染液(0、0.13、0.30、0.60、0.90、1.20、1.80、2.40、2.80和3.00 mg·mL<sup>-1</sup>)混合。放置于恒温振荡器中,50℃,150 r·min<sup>-1</sup>保持24h,收集上清液并用紫外可见分光光度计(UV-210 PC)在498nm条件下测定其吸光度,使用标准曲线计算残液浓度。根据Langmuir吸附等温线拟合分析几种物料对染料的吸附能力,对龙竹竹粉的可及范围做出评估。

1.3.2 化学组分测定 参照美国能源再生实验室NREL法<sup>[13]</sup>对DG、DG-E、DG-A和DG-GA的化学成分进行分析。用体积分数为72%的硫酸对物料进行酸水解,使用高效液相色谱仪(Agilent 1200S)对4种物料中的碳水化合物成分进行分析;使用紫外可见分光光度计在205nm处对酸溶木质素进行分析,将剩余固体残渣用G3砂芯漏斗洗净,65℃烘干,木质素总量为酸溶木质素与固体残渣的总和。

1.3.3 结构特性分析 分析DG、DG-E、DG-A和DG-GA等4种样品的化学结构,使用傅里叶红外光

谱仪 (Nexus 670, FTIR) 进行扫描, 扫描范围为  $4\ 000\sim 500\ \text{cm}^{-1}$ , 分辨率为  $2\ \text{cm}^{-1}$ , 扫描次数 32 次的模式下采集数据。采用 X 射线衍射分析仪 (X Pert Powder, XRD) 分析样品的结晶结构, 使用铜靶波长为  $0.154\ 18\ \text{nm}$ ,  $2\theta$  扫描区间为  $5^\circ\sim 40^\circ$ , 电压  $40\ \text{kV}$ , 电流  $40\ \text{mA}$ 。其中结晶指数可以根据 Segal 公式进行计算:  $I_{\text{cr}} = \frac{(I_{002} - I_{\text{amorph}})}{I_{002}} \times 100\%$ 。其中,  $I_{\text{cr}}$  为结晶指数,  $I_{\text{amorph}}$  指  $2\theta$  为  $18^\circ$  时无定形区衍射峰的强度,  $I_{002}$  为主结晶峰 002 的最大衍射强度。

使用扫描电子显微镜 (Hitachi Regulus 8100, SEM) 观察样品的表面形貌, 加速电压为  $2\sim 5\ \text{kV}$ , 物料表面喷金处理。采用热重分析仪 (TG), 分别称取 4 种样品约  $3.0\ \text{mg}$  于陶瓷坩埚中, 利用高纯度氮气作为保护气 (气体流量为  $20\ \text{mL}\cdot\text{min}^{-1}$ ) 和吹扫气 (气体流量为  $50\ \text{mL}\cdot\text{min}^{-1}$ ), 样品升温速率为  $10\ ^\circ\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ , 温度为  $35\sim 600\ ^\circ\text{C}$ 。

1.3.4 抑菌活性的测试 参照 GB/T 20944.3—2008<sup>[11]</sup>, 探究 DG-A 和 DG-GA 对大肠埃希菌和金黄色葡萄球菌的抑菌性能。在三角烧瓶中称取上述 2 种样品各  $(0.75\pm 0.05)\ \text{g}$ , 然后在烧瓶中各加入  $(70.00\pm 0.03)\ \text{mL}$   $0.03\ \text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$  的 PBS 缓冲溶液, 再加入  $5.0\ \text{mL}$  SA-2 菌液, 每种样品制备 3 个平行样, 另准备 3 个不加样品的空白对照; 将每个烧瓶盖好透气封口膜, 置于恒温振荡器上, 在  $(24\pm 1)\ ^\circ\text{C}$ , 以  $150\ \text{r}\cdot\text{min}^{-1}$ , 振荡 18 h。到规定时间后, 将烧瓶中的试液稀释至合适的倍数, 取  $(50.0\pm 0.1)\ \mu\text{L}$  移入固体培养基中, 每个试液及不同的稀释浓度制作 3 个平行样, 倒置平板, 在  $(37\pm 1)\ ^\circ\text{C}$ , 培养 24~48 h。选择 30~300 CFU 的平板进行计数, 对 DG-A 和 DG-GA 的活菌浓度进行计数。按下式计算抑菌率 (Y):  $Y = \frac{W_t - Q_t}{W_t} \times 100\%$ 。其中,  $W_t$  为空白对照组 3 组平行样菌液浓度的平均值;  $Q_t$  为每种试样 3 组平行样菌液浓度的平均值。

## 2 结果与分析

### 2.1 龙竹预处理前后及改性后的表征

2.1.1 可及度分析 图 1 表明: 经过苯醇抽提处理后的竹粉 (DG-E) 对染料的吸附量从  $44.92\ \text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$  增加到  $78.66\ \text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ ; 碱处理竹粉 (DG-A) 对染料的吸附量从  $78.66\ \text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$  增加到  $174.39\ \text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ , 增加了 121.7%。可能是由于碱液进入竹纤维束内部, 将细胞壁内的部分木质素和半纤维素溶解, 同时润胀纤维, 增大了竹粉的可及度。选择最大可及度的条件下制备的竹粉样品进行后续酯化改性。

2.1.2 化学组分分析 由图 2 可见: 经过苯醇抽提脱蜡处理的竹粉 (DG-E) 的木质纤维化学成分无明显变化; 碱处理竹粉 (DG-A) 的纤维素相对含量从 48.63% 增加到 61.24%, 半纤维素相对含量从 15.29% 减少到 11.39%, 木质素相对含量从 30.36% 减少到 18.81%。该结果表明: 碱处理去除了部分碳水化合物和木质素, 使得没食子酸与竹材内部的羟基接触反应的可能性变大<sup>[14]</sup>。DG-A 与 DG-GA 的化学组分比较结果显示: 纤维素、木质素和半纤维素的相对含量几乎不变, 可见没食子酸与竹粉的酯化反应对其纤维素、木质素和半纤维素的相对含量影响不大。

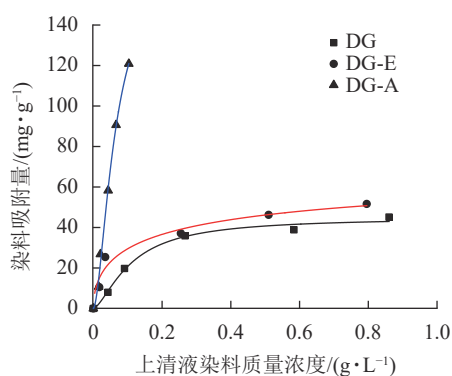


图 1 竹粉样品 DG、DG-E 和 DG-A 的 Langmuir 等温吸附曲线

Figure 1 Langmuir isothermal adsorption curves of bamboo powder samples DG, DG-E and DG-A

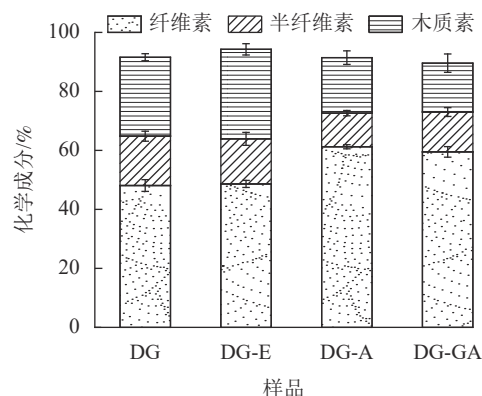


图 2 竹粉样品 DG、DG-E、DG-A 和 DG-GA 的化学组分

Figure 2 Chemical composition of bamboo powder samples DG, DG-E, DG-A and DG-GA

2.1.3 FTIR 分析 由图3可知: 3 401 和 2 900  $\text{cm}^{-1}$  处分别出现 O—H 和 C—H 的伸缩振动峰, 在 1 592 和 1 511  $\text{cm}^{-1}$  处的苯环伸缩振动峰是木质素的基本特征吸收峰<sup>[15]</sup>, 在 1 052  $\text{cm}^{-1}$  处是醚键 (C—O—C) 的吸收峰, 894  $\text{cm}^{-1}$  是木糖单元之间的  $\beta$ -糖苷键的特征吸收<sup>[16]</sup>; 对比 DG-E 和 DG-A, 在 1 724  $\text{cm}^{-1}$  处的酯键 (C=O) 消失, 这是由于木质素结构单元之间和木质素与碳水化合物之间的联接键是酯键, 该键在碱性条件下非常容易被水解<sup>[14]</sup>, 所以在碱处理之后, 该峰位置的信号明显减弱; 经过 GA 改性后, 1 724  $\text{cm}^{-1}$  处的 C=O 的吸收峰又显著增强, 并且在 1 150~1 200  $\text{cm}^{-1}$  处 C—O 的伸缩振动也增强, 说明竹粉表面可能生成酯键<sup>[17]</sup>。LIU 等<sup>[18]</sup> 用 GA 改性果胶, 证实了在 1 749  $\text{cm}^{-1}$  处, 果胶的羟基基团与 GA 末端的羧基形成酯键, 该结果与 GA 改性 DG 的结果相符。

2.1.4 XRD 分析 由图4可以看出: DG、DG-E、DG-A 和 DG-GA 等4种物料的峰形相似, 均表现出纤维素 I 型衍射峰。在  $2\theta$  为 16.0° 的峰对应为纤维素 (101) 晶面衍射峰, 在  $2\theta$  为 22.0° 的峰对应为纤维素 (002) 晶面衍射峰<sup>[14]</sup>。与原竹粉相比较, 随着抽提、碱处理和酯化反应的进行, 纤维素的结晶度逐渐降低, 这是由于碱的润胀作用会在一定程度上破坏纤维素的结晶结构, 从而降低结晶度<sup>[19]</sup>。经过酯化反应后, 结晶度由 54.93% 降至 50.73%, 这一变化可能是酯基的引入将相对松散的区域破坏, 使得结晶度下降。ZHU 等<sup>[20]</sup> 在松香酸改性木质纤维素的研究中, 也证实了酯化之后的纤维素结晶度有所降低。

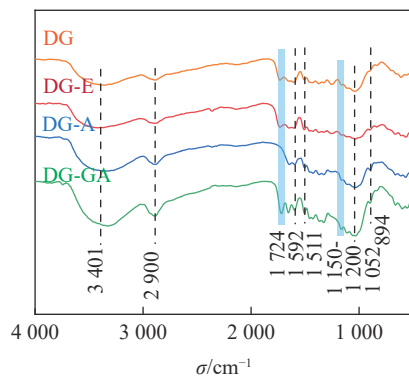


图3 竹粉样品 DG、DG-E、DG-A 和 DG-GA 的 FTIR 图

Figure 3 FTIR spectra of bamboo powder samples DG, DG-E, DG-A and DG-GA

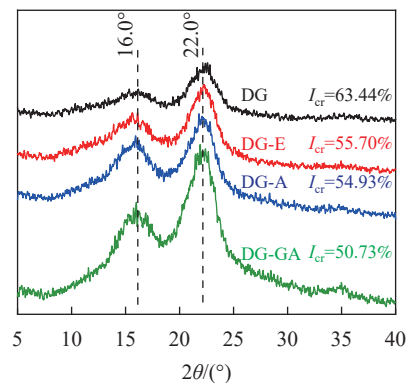


图4 竹粉样品 DG、DG-E、DG-A 和 DG-GA 的 XRD 图

Figure 4 XRD spectra of bamboo powder samples DG, DG-E, DG-A and DG-GA

2.1.5 SEM 分析 如图5所示: 天然 DG 表面有细微颗粒, 纤维束之间黏结紧密; 经过抽提后, DG-E 表面呈鳞状较为粗糙, 是因为解除了蜡质的包裹作用; 在碱处理后, 竹纤维经过润胀, 原本连接紧密的竹纤维束变得更加松散, 说明碱液有效的渗透到竹材中, DG-A 细胞之间的连接物质如木质素和半纤维素等减少, 这一现象与龙竹化学组分分析结果一致。由于部分低聚物溶出, 让原本致密的竹材变得松散, 使得 GA 更容易浸入到竹材内部发生反应。改性后的物料 DG-GA 更加光滑, 无明显的层次结构, 表明纤维素与 GA 酯化形成的产物可能形成了包裹物包裹在纤维上。

2.1.6 TG 分析 由图6所示: 在初始升温阶段 (30~200  $^{\circ}\text{C}$ ), 所有物料均无明显降解, 其质量损失主要是由物料中的水等小分子挥发所导致。180~360  $^{\circ}\text{C}$  阶段为纤维素、半纤维素和部分木质素的降解阶段<sup>[21]</sup>。对比可知, DG 和 DG-E 的初始降解温度为 190  $^{\circ}\text{C}$ , DG-A 的初始降解温度为 280  $^{\circ}\text{C}$ , 说明碱处理竹材热稳定性明显增强, 这是由于 DG-A 脱除了部分相对易热解的半纤维素和木质素所致。据报道<sup>[22]</sup>, GA 在 260  $^{\circ}\text{C}$  附近有明显的热化学转变, 但本研究在该温度附近并未出现转变, 说明 GA 并非简单吸附在竹粉表面, 而是通过与酯键与竹粉形成紧密结合。在纤维热降解最剧烈阶段 (320~360  $^{\circ}\text{C}$ ), DG-GA 的初始热解温度和最大降解速率温度均高于 DG, 说明本研究中所采用的没食子酸改性有助于提高竹材热稳定性。原因可能是由于酯化反应主要发生在竹纤维最外层, 包裹在竹纤维表面的酯化产物可以有效地充当物理屏障, 进而赋予竹粉较高的热稳定性。

## 2.2 DG-GA 的抑菌活性结果

由图7可见: 改性前物料 (DG-A) 对大肠埃希菌抑菌率为 30.70%, 改性后的物料 (DG-GA) 对大肠埃



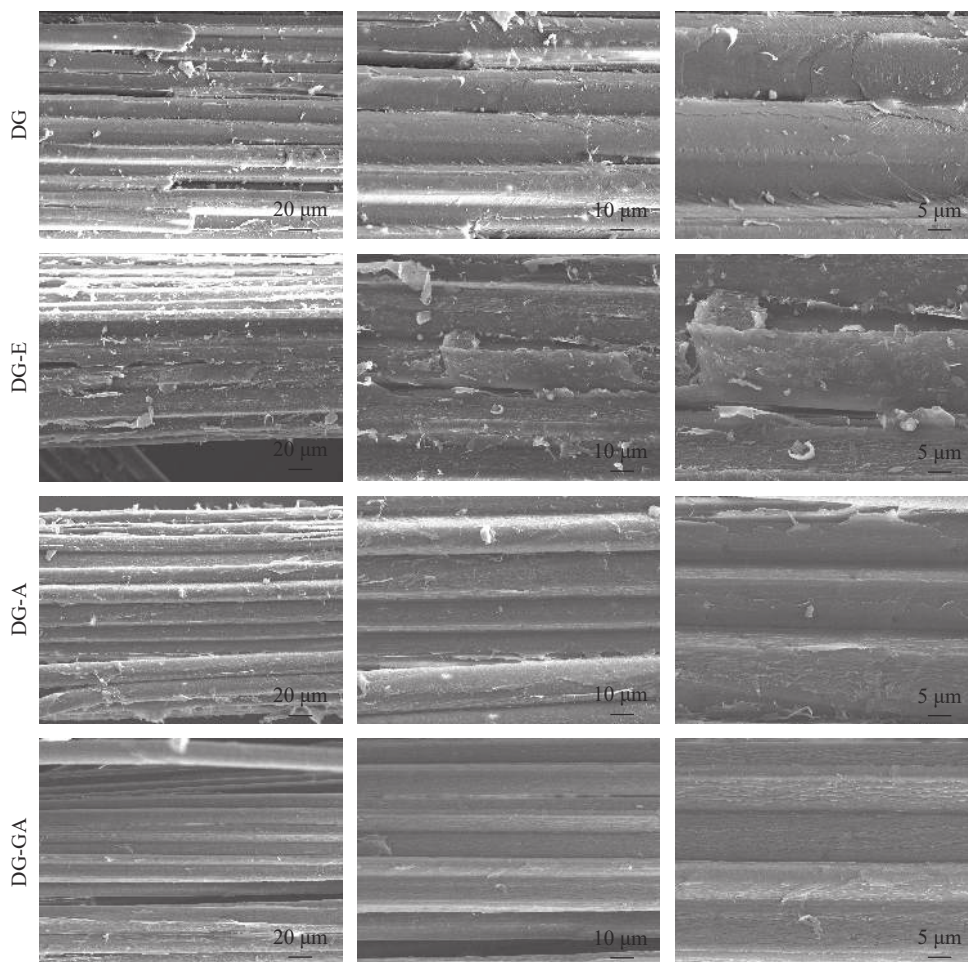


图 5 竹粉样品 DG、DG-E、DG-A 和 DG-GA 的 SEM 图

Figure 5 SEM images of bamboo powder samples DG, DG-E, DG-A and DG-GA

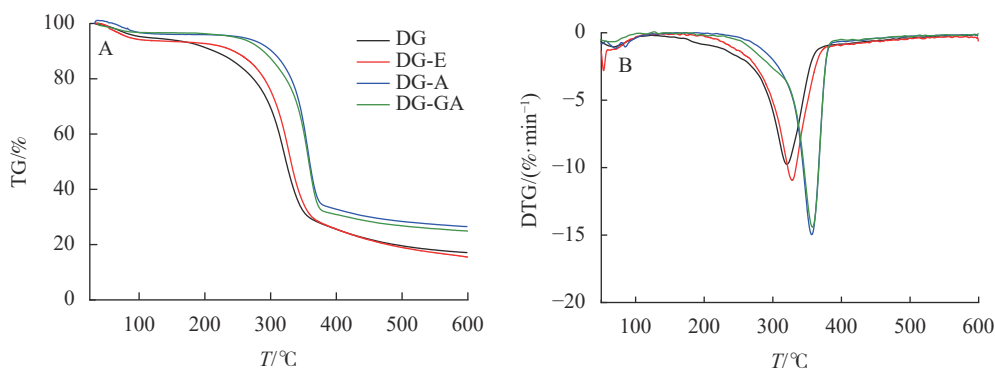


图 6 竹粉样品 DG、DG-E、DG-A 和 DG-GA 的 TG 和 DTG 曲线

Figure 6 TG and DTG curves of bamboo powder samples DG, DG-E, DG-A and DG-GA

希菌抑菌率为 93.24%，抑菌率提高了 62.54%；DG-A 对金黄色葡萄球菌抑菌率为 32.18%，DG-GA 对金黄色葡萄球菌抑菌率为 75.29%，抑菌率提高了 43.11%，抑菌效果明显提升。改性后的竹粉的菌落变得稀少，这是由于没食子酸与竹粉成功接枝，赋予了龙竹没食子酸的抑菌能力。ZHANG 等<sup>[7]</sup>将天然果胶用没食子酸酶法酰化，提高了对大肠杆菌和金黄色葡萄球菌的抑制率，这与本研究结果相似。

由图 8 发现：DG-GA 对大肠埃希菌的抑制作用优于金黄色葡萄球菌，这可能与革兰氏阳性菌有较厚的肽聚糖层结构有关<sup>[23]</sup>，对比革兰氏阴性菌的双膜结构，这种肽聚糖层结构具有更高级的保护屏障，因此改性竹材表现出对大肠埃希菌的抑菌效果优于金黄色葡萄球菌。改性得到的产物对革兰氏阴性菌和革兰氏阳性菌均表现出优异的抑制效果，可能是因为竹粉和没食子酸酯化后，其酚羟基能与细菌细胞上的金属离子螯合，影响细胞膜的通透性，使细菌代谢紊乱而不能正常生长，从而起到抑菌作用<sup>[24]</sup>。

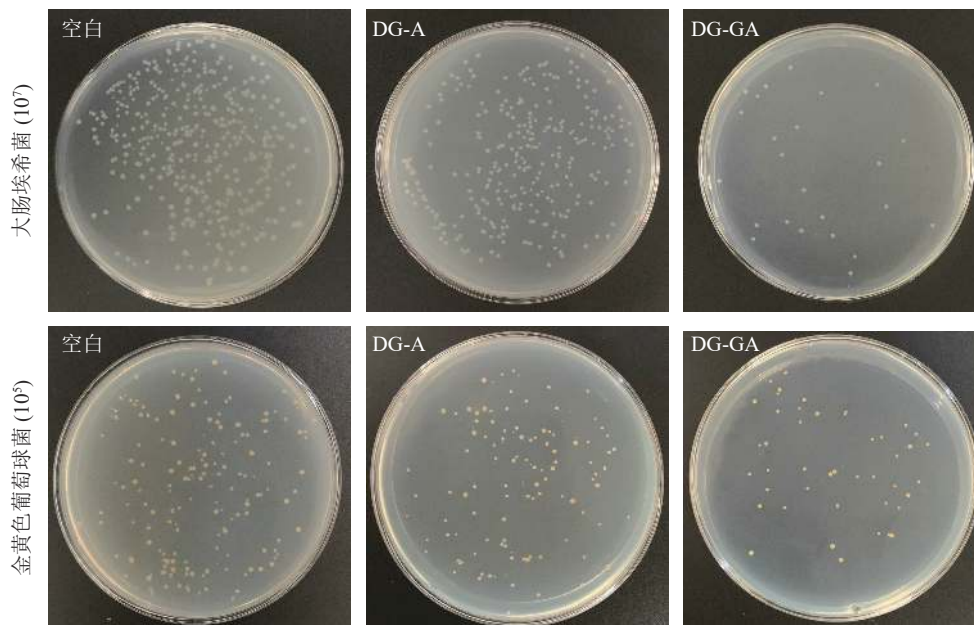


图7 竹粉样品 DG-A 和 DG-GA 对大肠埃希菌和金黄色葡萄球菌的抑菌效果

Figure 7 Antibacterial effect of bamboo powder samples DG-A and DG-GA on *E. coli* and *S. aureus*

### 3 讨论与结论

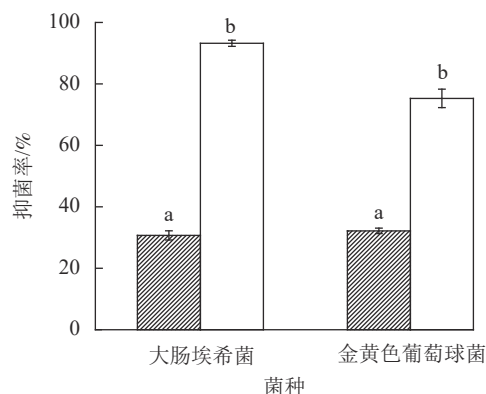
竹材由于含有营养物质易被微生物感染, 现存抑菌剂存在易流失和污染环境等问题, 本研究使用没食子酸对竹粉进行改性, 结果发现竹粉的抑菌效果有明显提升。通过振荡法对改性前后竹材抑菌活性的测试可知: 竹材对大肠埃希菌抑菌率为 93.24%, 对金黄色葡萄球菌抑菌率 75.29%。该研究与已有研究结果相似, 如 HUANG 等<sup>[25]</sup> 将没食子酸改性果胶, 对大肠埃希菌有 11.41 mm 的抑菌圈, 对金黄色葡萄球菌有 12.52 mm 的抑菌圈, 该产品作为涂层能有效地延长中国鲈鱼 *Lateolabrax muculatus* 鱼片的整体质量。ZHANG 等<sup>[7]</sup> 用酶法酰化天然果胶, 制备得到的样品对大肠埃希菌和金黄色葡萄球菌的抑制率也分别从 2.93% 和 8.92% 提高到 26.95%

和 42.18%。改性后物料红外分析表现出新的吸收峰, 结晶度下降, 纤维束表面变光滑, 最大降解温度增加, 抑菌效力显著增强, 均表明没食子酸与竹粉成功接枝。近些年, 没食子酸及其衍生物与竹材反应机制复杂, 反应过程受多因素影响<sup>[26]</sup>。在后续研究中, 可进一步阐明没食子酸与竹材的反应及抑菌机制。

在处理显著提高了龙竹粉可及度的基础上, 没食子酸可以与竹粉组分之间通过酯化反应形成接枝共聚物, 在竹纤维束表面形成一层包裹物, 使其表面变得更加光滑; 没食子酸改性后, 竹粉的热稳定性不仅没有降低, 反而提高约 40 °C; 没食子酸改性竹粉的抑菌效力明显提高。

### 4 参考文献

- [1] ZHANG Yamei, HUANG Xian'ai, YU Yanglun, *et al.* Effects of internal structure and chemical compositions on the hygroscopic property of bamboo fiber reinforced composites [J]. *Applied Surface Science*, 2019, **492**: 936 - 943.
- [2] JIN Lei, WU Daifu, LI Caiwu, *et al.* Bamboo nutrients and microbiome affect gut microbiome of giant panda [J]. *Symbiosis*, 2020, **80**(3): 293 - 304.



不同小写字母表示处理间差异显著 ( $P < 0.05$ )。

图8 竹粉样品 DG-A 和 DG-GA 对大肠埃希菌和金黄色葡萄球菌的抑菌率图

Figure 8 Antibacterial rate of bamboo powder samples DG-A and DG-GA on *E. coli* and *S. aureus*

- [3] MAI Xianmin, MAI Junping, LIU Houji, *et al.* Advanced bamboo composite materials with high-efficiency and long-term anti-microbial fouling performance [J]. *Advanced Composites and Hybrid Materials*, 2022, **5**(2): 864 – 871.
- [4] 隆福强, 宋俊, 李凯华, 等. 抗菌纤维素纤维的研究进展[J]. 高分子通报, 2022(7): 29 – 38.  
LONG Fuqiang, SONG Jun, LI Kaihua, *et al.* Research advance of antibacterial cellulose fibers [J]. *Polymer Bulletin*, 2022(7): 29 – 38.
- [5] 杨慧, 曲也直, 高雅然, 等. 植物多酚-蛋白质复合物生物活性及应用研究进展[J]. 食品科学, 2022, **43**(3): 258 – 266.  
YANG Hui, QU Yezhi, GAO Yaran, *et al.* Recent advances in understanding the biological activities and applications of polyphenol-protein complexes [J]. *Food Science*, 2022, **43**(3): 258 – 266.
- [6] 张杰, 党斌, 杨希娟, 等. 植物多酚的生理活性、抑菌机理及其在食品保鲜中的应用研究进展[J]. 食品工业科技, 2022(24): 460 – 468.  
ZHANG Jie, DANG Bin, YANG Xijuan, *et al.* Research progress on physiological activity, antibacterial mechanism of plant polyphenols and its application in food preservation [J]. *Science and Technology of Food Industry*, 2022(24): 460 – 468.
- [7] ZHANG Guoguang, ZHENG Chenmin, HUANG Bingqing, *et al.* Preparation of acylated pectin with gallic acid through enzymatic method and their emulsifying properties, antioxidation activities and antibacterial activities [J]. *International Journal of Biological Macromolecules*, 2020, **165**: 198 – 204.
- [8] ZARANDONA I, PUERTASA I, DUEÑAS M T, *et al.* Assessment of active chitosan films incorporated with gallic acid [J/OL]. *Food Hydrocolloids*, 2020, **101**: 105486[2022-11-05]. doi:10.1016/j.foodhyd.2019.105486.
- [9] ZHU Enqing, XU Gaofeng, YE Xinyao, *et al.* Preparation and characterization of hydrothermally pretreated bamboo powder with improved thermoplasticity by propargyl bromide modification in a heterogeneous system [J]. *Advanced Composites and Hybrid Material*, 2021, **4**(4): 1059 – 1069.
- [10] CHAUDHARY J P, CHEJARA D R, MAKWANA D, *et al.* Agarose based multifunctional materials: evaluation of thixotropy, self-healability and stretchability [J]. *Carbohydrate Polymers*, 2014, **114**: 306 – 311.
- [11] 中国国家标准化管理委员会. 纺织品抗菌性能的评价第3部分振荡法: GB/T 20944. 3—2008 [S]. 北京: 中国标准出版社, 2008.  
Standardization Administration of China. *Textiles-Evaluation for Antibacterial Activity-Part 3: Shake Flask Method: GB/T 20944. 3—2008* [S]. Beijing: Standards Press of China, 2008.
- [12] INGLESBY M K, ZERONIAN S H. Direct dyes as molecular sensors to characterize cellulose substrates [J]. *Cellulose*, 2002, **9**(1): 19 – 29.
- [13] SLUITER A, HAMES B, RUIZ R, *et al.* Determination of structural carbohydrates and lignin in biomass [J]. *Laboratory Analytical Procedure*, 2008, **1617**(1): 1 – 16.
- [14] 杨淑惠. 植物纤维化学[M]. 北京: 中国轻工业出版社, 2001: 97 – 98.  
YANG Shuhui. *Plant Fiber Chemistry* [M]. Beijing: China Light Industry Press, 2001: 97 – 98.
- [15] 吴文娟, 闫雪晴, 邹春阳, 等. 基于全溶体系的毛竹竹材木质素分离方法[J]. 浙江农林大学学报, 2020, **37**(2): 335 – 342.  
WU Wenjuan, YAN Xueqing, ZOU Chunyang, *et al.* A isolation method of lignin from bamboo based on complete dissolution [J]. *Journal of Zhejiang A&F University*, 2020, **37**(2): 335 – 342.
- [16] SUN Shaofei, YANG Haiyan, YANG Jing, *et al.* Integrated treatment of perennial ryegrass: Structural characterization of hemicelluloses and improvement of enzymatic hydrolysis of cellulose [J/OL]. *Carbohydrate Polymers*, 2021, **254**: 117257 [2022-11-05]. doi: 10.1016/j.carbpol.2020.117257.
- [17] ELTON M A B, SOLRANNY C C C S, CARLA A R S B, *et al.* Spectroscopic, thermal characterizations and bacteria inhibition of chemically modified chitosan with phthalic anhydride [J/OL]. *Materials Chemistry and Physics*, 2020, **240**: 122053 [2022-11-05]. doi: 10.1016/j.matchemphys.2019.122053.
- [18] LIU Jingna, WANG Tielong, HUANG Bingqin, *et al.* Pectin modified with phenolic acids: evaluation of their emulsification properties, antioxidation activities, and antibacterial activities [J]. *International Journal of Biological Macromolecules*, 2021, **174**: 485 – 493.
- [19] WU Jie, RICHARD C, MASATSUGU T, *et al.* Alkaline sulfonation and thermomechanical pulping pretreatment of softwood chips and pellets to enhance enzymatic hydrolysis [J/OL]. *Bioresource Technology*, 2020, **315**: 123789 [2022-11-05]. doi: 10.1016/j.biortech.2020.123789.

- [20] ZHU Enqing, XU Gaofeng, SUN Shaofei, *et al.* Rosin acid modification of bamboo powder and thermoplasticity of its products based on hydrothermal pretreatment [J]. *Advanced Composites and Hybrid Materials*, 2021, **4**: 584 – 590.
- [21] 李媛媛, 张双燕, 王传贵, 等. 毛竹采伐剩余物的化学成分、纤维形态及纸浆性能[J]. *浙江农林大学学报*, 2019, **36**(2): 219 – 226.
- LI Yuanyuan, ZHANG Shuangyan, WANG Chuangui, *et al.* Chemical composition, fiber morphology, and pulping properties of loggingresidues in *Phyllostachys edulis* [J]. *Journal of Zhejiang A&F University*, 2019, **36**(2): 219 – 226.
- [22] TSIOPTSIAS C, TSIVINTZELIS I, *et al.* Insights on thermodynamic thermal properties and infrared spectroscopic band assignments of gallic acid [J/OL]. *Journal of Pharmaceutical and Biomedical Analysis*, 2022, **221**: 115065 [2022-11-05]. doi: 10.1016/j.jpba.2022.115065.
- [23] JIA Boyan, WANG Yiming, ZHANG Ying, *et al.* High cell selectivity and bactericidal mechanism of symmetric peptides centered on d-pro-gly pairs [J/OL]. *International Journal of Molecular Sciences*, 2020, **21**(3): 1140 [2022-11-05]. doi: 10.3390/ijms21031140.
- [24] 欧凯玉, 逢建龙, 张一敏, 等. 天然酚类化合物的抑菌作用及在肉与肉制品中的应用研究进展[J]. *食品科学*, 2023, **44**(9): 358 – 366.
- OU Kaiyu, PANG Jianlong, ZHANG Yimin, *et al.* Review of the Bacteriostasis of natural phenolic compounds and application in meat and meat products [J]. *Food Science*, 2023, **44**(9): 358 – 366.
- [25] HUANG Bingqing, ZHANG Zhigang, DING Nengshui, *et al.* Investigation of the pectin grafting with gallic acid and propyl gallate and their antioxidant activities, antibacterial activities and fresh keeping performance [J]. *International Journal of Biological Macromolecules*, 2021, **190**: 343 – 350.
- [26] WANG Jie, WANG Hui, WU Xinxing, *et al.* Anti-mold activity and reaction mechanism of bamboo modified with laccase-mediated thymol [J/OL]. *Industrial Crops and Products*, 2021, **172**: 114067 [2022-11-05]. doi: 10.1016/j.indcrop.2021.114067.