

刘强, 李叶青, 冯璐, 周红军. 基于厌氧消化的“电转蛋白质”研究进展[J]. 应用与环境生物学报, 2023, 29 (2): 289-296
Liu Q, Li YQ, Feng L, Zhou HJ. Research progress of Power-to-Protein based on anaerobic digestion [J]. Chin J Appl Environ Biol, 2023, 29 (2): 289-296

基于厌氧消化的“电转蛋白质”研究进展

刘强¹ 李叶青¹ 冯璐^{2,3} 周红军¹

¹中国石油大学(北京)新能源与材料学院, 重质油国家重点实验室, 生物燃气高值利用北京市重点实验室 北京 102249

²丹麦奥胡斯大学生物和化学工程系 切勒 8830

³挪威生物经济研究院(NIBIO) 奥斯 1431

摘要 利用可再生能源发电获得单细胞蛋白质, 即“电转蛋白质(Power-to-Protein, PtP)”, 是生产单细胞蛋白质的绿色可持续途径。厌氧消化(anaerobic digestion, AD)可提供“电转蛋白质”过程中所需要的碳源以及部分氮源、微量元素等, 通过厌氧消化与“电转蛋白质”技术相结合构建了一种可持续的蛋白质生产工艺, “厌氧消化-电转蛋白质(anaerobic digestion-Power-to-Protein, ADPtP)”。本文介绍现有利用AD出料培养微生物获得单细胞蛋白质的工艺, 分析引入PtP技术后的工艺效率与能耗, 重点介绍ADPtP工艺的基础模式、过程中资源整合与利用。在电化学法还原模式中将沼气升级后培养甲烷氧化细菌操作简便易行且环境效益高, 而以Wood-Ljungdahl碳转化途径设计的ADPtP工艺在安全性方面占优势。ADPtP工艺中, 降低爆炸风险和提高转化效率是亟须解决的关键问题。另外, 工艺中资源整合方式为电化学沼气升级、电化学消化液提氨、电解水产氢。未来, 我国沼气产量与潜在储备量以及可再生能源发电量将为ADPtP提供发展基础, 同时具有良好的政策环境和巨大的潜在蛋白质市场需求, 因此该工艺在我国作为新型绿色蛋白质生产工艺而施行具有良好基础与应用前景。(图1 表2 参64)

关键词 厌氧消化; 单细胞蛋白质; 电转蛋白质; 可再生能源

Research progress of Power-to-Protein based on anaerobic digestion

LIU Qiang¹, LI Yeqing¹, FENG Lu^{2,3} & ZHOU Hongjun¹

¹State Key Laboratory of Heavy Oil Processing, Beijing Key Laboratory of Biogas Upgrading Utilization, College of New Energy and Materials, China University of Petroleum Beijing, Beijing 102249, China

²Department of Biological and Chemical Engineering, Aarhus University, Tjele 8830, Denmark

³Norwegian Institute of Bioeconomy Research (NIBIO), Ås 1431, Norway

Abstract Power-to-protein (PtP) is a sustainable approach to produce single-cell proteins that uses renewable energy to generate electricity, which in turn powers the protein synthesis. Anaerobic digestion (AD) can be incorporated into this approach, to provide the carbon, nitrogen, and trace elements needed for PtP. Through this combination, a sustainable ADPtP process for protein synthesis could be developed. This article introduces the existing technologies for utilizing AD to culture microorganisms and obtain single-cell proteins, analyzes the process efficiency and energy consumption after the introduction of PtP technology, and describes the basic method of ADPtP, including the integration of the two processes. Using the electrochemical reduction method, upgrading biogas to cultivate methane-oxidizing bacteria is straight-forward and has remarkable environmental benefits. The ADPtP process, designed using the Wood–Ljungdahl carbon conversion pathway, has key advantages in terms of safety, reduced explosion risk, and improved conversion efficiency. In addition, the methods of resource integration into the process include electrochemical biogas upgrading, electrochemical ammonia extraction from the digestate, and electrolysis of water to produce hydrogen. China's biogas production, potential reserves, and renewable-energy-based power generation will provide a basis for the future developments in ADPtP. The current policy environment is encouraging and a huge market demand exists for single-cell proteins. Therefore, ADPtP has a sound foundation and strong prospects for implementation as a new green process for protein production in China.

Keywords anaerobic digestion; single-cell protein; Power-to-Protein; renewable energy

收稿日期 Received: 2021-09-20 接受日期 Accepted: 2022-06-13

中国石油大学(北京)科研基金项目(2462020BJRC003, 2462020YXZZ018)、中国石油天然气集团有限公司-中国石油大学(北京)战略合作科技专项项目(ZLZX2020-04)资助 Supported by the Research Fund of China University of Petroleum (Beijing) (2462020BJRC003, 2462020YXZZ018) and China National Petroleum Corporation-China University of Petroleum (Beijing) Strategic Cooperation Science and Technology Special Project (ZLZX2020-04)

✉通信作者 Corresponding authors (E-mail: liyeqingcup@126.com; fenglu2002@gmail.com)

单细胞蛋白质 (single-cell protein, SCP) 是一种潜在的蛋白质替代品, 是指富含蛋白质的单细胞微生物, 具有较高的粗蛋白含量[67-81 g/(100 g)]且各类必需氨基酸含量十分均衡^[1]。微生物具有很强的增殖能力, 因而利用其生产蛋白质具有很高的效率^[2-3]。1968年, 单细胞蛋白质的概念被提出^[4], 随后许多研究者报道了利用不同微生物生产单细胞蛋白质的研究, 如细菌^[5-6]、酵母菌^[7]、微藻^[8]、真菌^[9]等。为降低生产成本同时提高可持续性, 大多数研究在培养微生物时以生物质废弃物为底物。然而, 利用生物质废物直接转化为单细胞蛋白质存在污染问题, 因为这些废弃物很可能含有有害病菌、抗生素或重金属等。

当前, 随着可再生能源的发展, 一种利用可再生能源产电(可再生电)生产单细胞蛋白质的技术——“电转蛋白质(Power-to-Protein, PtP)”展现出极大的发展潜力^[10]。自2015年以来, 研究人员一直致力于利用可再生能源产蛋细胞蛋白质的研究^[11]。直到2016年, PtP的概念首次在国际水处理协会(IWA)世界水会上提出, 引起了全球的广泛关注^[12]。PtP是指通过电化学与生物技术耦合将可再生电和CO₂转化为蛋白质^[12], 是类似于将可再生能源产生的电能储存为能源气体的“电转气”(Power-to-Gas, PtG)技术^[13]或者说是对PtG概念的延伸。其基本流程是将可再生电能通过电解水转化为H₂, 然后主要利用H₂和气态碳源(CO₂等)培养微生物以获得单细胞蛋白质。厌氧消化(anaerobic digestion, AD)是生物质废弃物处理处置的重要技术, 其产生的沼气含有55%-60%的CH₄和40%-45%的CO₂^[14-15], 可以为PtP工艺提供充足的碳源, 而沼液可以提取氮源。因此, 将AD与PtP耦合为“厌氧消化-电转蛋白质(ADPtP)”工艺, 形成了从废弃生物质与可再生能源到单细胞蛋白质转化的完整途径。该工艺以厌氧消化后产生的气态物质为底物, 与现有的以生物废弃物为底物工艺相比可以避免污染的风险^[16]。因此, ADPtP在处理大量生物废弃物的同时, 将沼气和氮源(沼液可提供部分氮源)转化为单细胞蛋白质将会是一种低成本、无污染、可持续的蛋白质生产方案。

到目前为止, 尚未见到关于ADPtP的系统综述。本文即综述目前与ADPtP相关的技术, 重点介绍转化工艺、资源整合与利用, 明确工艺优势与缺点, 为工艺研究、开发与运行提供借鉴; 此外, 结合我国的沼气生产与可再生能源现状对ADPtP在我国的发展前景进行展望。

表1 不同原料厌氧消化的沼气产量与沼液特征

Table1 Yield of biogas and characteristics of digestate produced by anaerobic digestion with different raw materials

原料 Raw material	产气量 Biogas yield (Y/mL g ⁻¹ VS)	沼液 Digestate				参考文献 Reference
		总氮 Total nitrogen (ρ/g L ⁻¹)	氨氮 Ammonia nitrogen (ρ/g L ⁻¹)	总磷 Total phosphorus (ρ/g L ⁻¹)	总钾 Total potassium (ρ/g L ⁻¹)	
粪便 Manure	606.2-869.1	0.8-5.3	0.91-3.9	0.061-0.54	1.370	[17-18]
污水污泥 Sewage sludge	472.3-691.8	0.8-4.7	0.363-0.543	0.208-0.781	0.026	[17, 19]
秸秆(青贮饲料) Straw (silage)	492.06-1472.5	1.4-1.29	0.893-1.15	0.074		[17]
餐厨垃圾 Food waste	651.34-2371.03	2.43-10.1	0.388-5.226	0.46-0.477		[17, 20]
农业-工业废弃物 Agricultural-industrial waste	821.5-1444	2.949 (105 g/kg)	2.499	0.102	4.710	[17]
城市固体废弃物 Municipal solid waste	456.8-1398	110 g/kg	1.7-7.5	0.233		[17, 21]

VS: 挥发性固体. VS: Volatile solid.

1 厌氧消化(AD)过程及出料

AD过程中利用厌氧菌将废弃有机物经过水解酸化、产氢乙酸、甲烷化三阶段转化为沼气、沼液、沼渣, 有机废弃物包括粪便、污水污泥、农作物秸秆、餐厨垃圾、工业废弃物、城市固体废弃物。沼气是甲烷化阶段的产物, 主要含有55%-60%的CH₄以及40%-45%的CO₂^[14-15]。沼液和沼渣为AD副产物, 主要由AD过程前期有机物未完全降解形成的残留物、厌氧菌组成的厌氧污泥及甲烷化产生的消化物组成。沼液占总消化液体积的90%, 颗粒直径<1.2 mm, 固体物质干重含量为2%-6%, 含有消化底物中大部分可溶性氮和磷, 以及各种微量元素。相关研究表明, 70%-80%的总氮、35%-45%的总磷存在沼液中, 氮主要以氨氮形式存在, 占总氮含量的60%-80%^[17]。由于体系密封, AD过程中营养物被最大限度保留下来。表1为不同原料厌氧消化的沼气产量与沼液特征, 营养元素特别是氮源含量高。此外, AD过程可减少2-3 log(即100-1 000倍)病原体含量, 有利于后续将沼液作为培养液利用。

2 厌氧消化-单细胞蛋白质(AD-SCP)技术比较

目前, 基于AD生产SCP的技术主要包括“消化液产SCP”“沼气产SCP”“沼气+消化液产SCP”, 如表2所示。直接利用消化液、水解液为培养底物培养酵母菌(或/和微藻)工艺简单、能耗低, 但为了避免培养液中存在有毒有害物质, 往往需要食品级废弃物厌氧消化液/水解液提供碳源与氮源, 如乳制品废水厌氧消化、甘蔗渣半纤维素水解物等。另有研究利用沼气中的CH₄或CO₂为碳源培养甲烷氧化菌(methane-oxidizing bacteria, MOB)或氢氧化细菌(hydrogen-oxidizing bacteria, HOB)获取SCP, 氮源来源为培养基, 但利用培养基或者氢气导致工艺成本高。而引入PtP, 即通过电化学(可再生能源电)将沼气升级、电解水转化为H₂、电化学厌氧消化液提氮, 则完全规避了培养微生物与厌氧消化液直接接触从而避免了污染, 同时捕获整个厌氧消化工艺中产生的碳源、氮源并转化为高附加值产品, 且可以储存季节波动性较大的可再生能源发电量。

PtP工艺存在能源转化过程, 因此其效率与能耗是决定ADPtP可行性的关键。研究发现, 当利用原位电解水产H₂培养HOB时, 1 kg生物质平均能耗为25 kWh^[22]。另有研究表明, 直接电化学还原固碳得到乙酸培养SCP的单位能量转化生物质为32.8 mg/kJ, 即1 kg生物质平均能耗为8.5 kWh(蛋白质

含量40%-50%)^[12], 将SCP按鸡蛋的市场价格计算, 一度电转化得到的SCP价格约为0.9元, 高于市售电价, 因此其效率与能耗具有经济效益。质子交换膜技术电解水技术成熟且效率高, Sillman等计算了利用该电解技术结合Matassa等人的高H₂转化率培养HOB连续式反应器能耗, 结果显示1 kg生物质平均能耗仅为4.7 kWh^[22-23]。在电化学沼气升级后培养MOB工艺过程中, 平均能耗为15.3 kWh/kg, 按目前陆上风电价格计算, 每千克产物的成本约为6.12元, 预计低于市售价格。与升级前相比, 阴极升级气培养获得的产物生物质浓度、产量、容积产率均提高, 且产物蛋白质含量提高了10%, 蛋白质容积产率提高了86.6%^[24]。工业合成氨中每千克氮能耗为10.3-12.5 kWh, 当利用电化学提取消化液中氮源时, 每千克氮的能耗在4.94-14.4 kWh范围内, 如考虑额外产生H₂的价值, 能耗将降低至8 kWh/kg^[25]。具体能耗与消化液中氮源浓度以及电压有关, 电压从3 V升高至3.5 V, 电化学系统在运行48 h后对城市生活垃圾消化液以及粪便消化液中氮的回收率分别为33.6%、50.8%。若提取的氮80%转化为蛋白质, 则平均1 kg蛋白质能耗不超过2.76 kWh^[24]。综上分析, 与其他工艺相比, PtP与AD结合提高了工艺能耗, 但同时提高了沼气、消化液中资源的转化、提取与利用。

3 厌氧消化-电转蛋白质(ADPtP)工艺基础模式

根据不同的气态碳源转化途径, ADPtP工艺可分为3种模式, 即电化学法还原模式、卡尔文-本森-巴沙姆(Calvin-Benson-Bassham, CBB)循环模式和伍德-隆德尔(Wood-Ljungdahl, W-L)途径模式^[12]。流程1: 非生物法固碳后利用细菌生产单细胞蛋白质的ADPtP工艺流程; 流程2: 利用细菌通过CBB循环生产单细胞蛋白质的ADPtP工艺流程^[1]; 流程3: W-L途径固定CO₂后生产单细胞蛋白质的ADPtP工艺流程。

表2 现行基于厌氧消化的产单细胞蛋白质(SCP)相关技术

Table 2 Current technologies related to single-cell protein (SCP) production based on anaerobic digestion

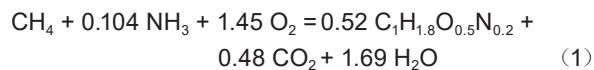
技术类型 Technology type	碳源 Carbon source	氮源 Nitrogen source	氢气 Hydrogen	微生物 Microorganism	能耗 Energy consumption	成本 Cost	参考文献 Reference
消化液产SCP SCP production from digestate	消化液 Digestate	消化液 Digestate	不需要 Unnecessary	微藻/酵母菌 Microalgae / yeast	低 Low	低 Low	[26-27]
	水解液 Hydrolysate	水解液 Hydrolysate	不需要 Unnecessary	酵母菌 Yeast	低 Low	低 Low	[5, 7]
沼气产SCP SCP production from biogas	升级后的沼气 Upgraded biogas	培养基 Culture medium	实验室氢气罐/沼气电化学升级阴极气 Hydrogen tank in laboratory/cathode gas after electrochemical upgrading of biogas	MOB/HOB	高 High	高 High	[6]
沼气+消化液提取氮产SCP SCP production from biogas and nitrogen extracted from digestate	CO ₂	消化液 Digestate	实验室氢气罐 Hydrogen tank in laboratory	HOB	低 Low	高 High	[11]
	CO ₂	消化液 Digestate	可再生电解脱水 Electrolytic water from renewable electricity	HOB	高 High	中 Medium	[12]
	升级后的沼气 (98% CH ₄)	消化液 Digestate	不需要 Unnecessary	MOB	高 High	中 Medium	[6, 24]

在碳源来源过程、氢气来源过程引入电化学工艺时能耗等级分别为“+”, 当达到“+”时判定为高能耗; 氢气来源于实验室氢气罐时成本等级为“*”, 当达到“*”时判定为高成本。另外, 能耗等级达到“++”时判定为高成本, 能耗等级达到“+”时判定成本等级为中等。

When the electrochemical process is introduced into the source process of carbon and hydrogen, the energy consumption level is “+” respectively. When it reaches “+”, it is judged as highly energy consumption. When the hydrogen source is from the hydrogen cylinder, the cost level is “*”. When it reaches “*”, it is judged as high cost. In addition, it is judged as high cost when the energy consumption level reaches “++”, and the cost level is judged as medium when the energy consumption level reaches “+”.

3.1 电化学法还原模式

电化学法还原模式是利用电化学法先将沼气升级, 然后富集微生物的ADPtP工艺, 如图1流程1所示。在反应器中接种MOB, 以沼气中的CH₄作为碳源, 氮源和氧气来源于消化液和水的电解, MOB利用CH₄生产单细胞蛋白质的反应式为(1)^[26]。



MOB可以在纯培养和混合培养两种条件下进行培养。Rasouli等研究表明, 在实验室条件下使用*Methylococcus capsulatus* (MOB) 纯培养获得了1.15 g L⁻¹ d⁻¹ [生物质产量(DCW/COD)为0.38 g/g]的生物质产率和质量分数52.5%的蛋白质含量^[27]。该研究继续以甲醇为碳源进行大规模试验研究, 结果生物质产率提高到4 g L⁻¹ h⁻¹ [生物质产量(DCW/COD)为0.37 g/g], 蛋白质含量达到质量分数70%。纯培养获得的生物质蛋白质成分均一, 有利于后续加工, 后续研究方向是寻找合适的纯培养菌株以获得较高的生物质产量和产率。而根据调研, 当前相关研究大多采用混合培养模式, 可能的原因是混合培养模式的初始接种物容易获取且因为存在群落效应而容易培养。例如, Khoshnevisan等和Yazdian等报道了以*Methylomonas* sp.为主的混合体的生物质产量(DCW/CH₄)和产率分别可达到0.88 ± 0.05 g/g和0.257 g L⁻¹ d⁻¹^[24, 28]。

MOB蛋白质含量通常在质量分数53%-70%之间, Mishra等研究表明, 使用MOB的单位输入能量的生物质产量为18.2-30.4 mg/kJ^[12]。该工艺模式具有很高的固碳效率, 与AD结合产SCP工艺简单易行, 但由于当前使用的催化剂或电极材料多为贵金属并且设计较复杂, 进一步研究高效、低廉的催化剂或者电化学还原装置是下一步工作重点。

3.2 CBB循环模式

在CBB循环(图1中流程2)中, CO₂通过碳浓度机制富集至酶附近, 然后核酮糖-1,5-二磷酸羧化酶/加氧酶(RubisCO)催化CO₂转化为3-磷酸甘油酯并进一步转化为糖类物质^[29-30]。

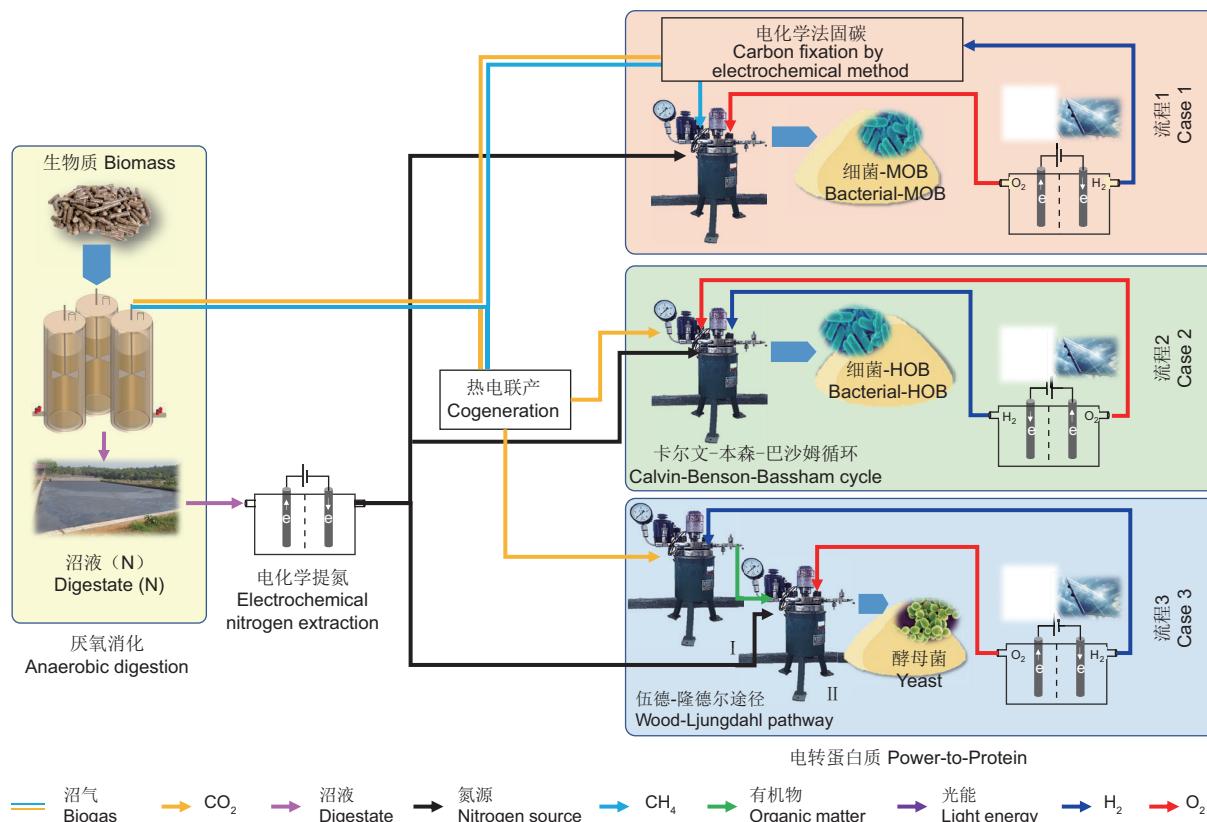
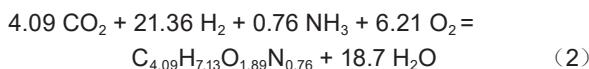


图1 “厌氧消化-电转蛋白质”工艺流程图(根据文献[12]修改). MOB: 甲烷氧化菌; HOB: 氢氧化细菌.

Fig. 1 Charts of ADPtP process (revised from Ref [12]). MOB: Methane-oxidizing bacteria; HOB: Hydrogen-oxidizing bacteria.

沼气热电联产产生的CO₂进入接种氢氧化细菌(hydrogen-oxidizing bacteria, HOB)的生物反应器作为碳源; H₂和O₂来源于水的电解, 分别作为电子供体和电子受体, 所用电能为可再生能源电; 氮源由沼液提供. 反应式为(2)^[31-32]:



HOB的培养模式包括纯培养与混合培养. Morinaga等(1978)对*Alcaligenes hydrogenophilus*纯培养进行了详细研究, 其生物质产量(DCW/H₂)和产率分别为0.23 g/g和0.1-0.3 g L⁻¹ h⁻¹, 所获得生物质的平均蛋白质含量的质量分数为70%^[33]. 与纯培养相比, 混合培养具有提高微生物活性(环境适应性、群体感应效应^[34])的优点, 更有利于大规模生产. 例如, Matassa等培养HOB混合体(由HOB *Sulfuricurvum* spp.主导)获取单细胞蛋白质, 结果表明, 生物质产量(DCW/H₂)为0.29 g/g, 生物质产率为0.406 g L⁻¹ h⁻¹, 蛋白质含量质量分数为71%^[35]. 此外, 以HOB为来源的蛋白质含有丰富的必需氨基酸(赖氨酸、苯丙氨酸、苏氨酸等)^[36], 有望成为鱼粉或豆粕的替代品. 其他HOB菌种包括*Rhodococcus opacus*、*Xanthobacter autotrophicus*、*Alcaligenes eutrophus* (ATCC 17707)^[37]等.

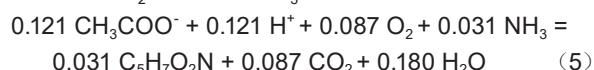
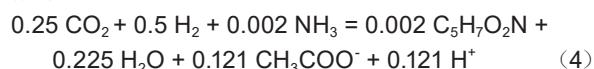
CBB循环模式在一个单独的生物反应器即可完成固碳和生物质富集过程, 获得的生物质蛋白质含量较高, 质量分数达到70%-75%^[24], 氮源转化效率较高. 但RubisCO酶催化固碳效率低且氢气溶解度低, 限制了体系的转化效率, 单位输入能量的蛋白质产量仅为9.5 mg/kJ^[35]. 此外, 氢气和氧气同时进入反应器容易发生爆炸(氢气的爆炸极限为4.0%-75.6%, 体积分数), 存在不可忽视的安全问题.

3.3 W-L途径模式

W-L途径或称乙酰辅酶A(acetyl-CoA, AcCoA)还原途径^[38-39], 该途径可获得C—C键产物、乙酸或乙醇等, 是厌氧条件下最常见的碳固定途径^[31]. 固碳反应式如下:



基于该途径设计的ADPtP工艺流程如图1中流程3所示, 一级反应器I利用微生物通过W-L途径将H₂和CO₂转化为CH₃COOH(或C₂H₅OH), 反应式如(4)所示^[40]. 二级反应器II接种异养微生物(如酵母、酿酒酵母等), 以一级反应器I中产生的有机碳(乙酸、乙醇等)为底物进行富集培养, 反应式如(5)所示.



目前, Molitor等利用纯CO₂、H₂以及培养基通过W-L途径模式固碳后又利用酵母菌富集获得了单细胞蛋白质^[10]. 其基本流程为: 在一级反应器I中, 以H₂为电子供体, *Clostridium ljungdahlii* PETC (DSM 13528) 将CO₂还原为乙酸, 然后乙酸过滤(保留、灭菌)后进入单细胞蛋白质生产反应器II, 反应器II中接种酿酒酵母(*Saccharomyces cerevisiae* S288C), 利用乙酸以及培养基中的氮源进一步转化为蛋白质, 最终酵母菌生生物质粗蛋白含量的质量分数为50%-60%, 蛋白质产率为1.56 ± 0.29 g L⁻¹ d⁻¹. Qu等纯培养*Trichosporon cutaneum* 851S获得的生物质产量(DCW/TS)和产率分别是0.72 g/g和3.0 g L⁻¹ h⁻¹, 最终产品的蛋白质含量的质量分数接近50%^[41]. 经比较, 在相关研究所使用的酵母菌中*Candida tropicalis* (KP276650)

的蛋白质含量最高，质量分数达到60.05%^[42]。

与CBB循环模式相比，利用W-L途径固碳然后利用异养菌获取单细胞蛋白质，避免了H₂和O₂在同一反应器中同时聚集而产生爆炸隐患。此外，该模式的单位输入能量产量较高，达到24.4 mg/kJ^[12]。缺点是利用微生物在厌氧环境下固碳的效率较低，虽然有研究表明梭状芽孢杆菌的W-L固碳途径效率可达到80%^[10]，但从接种到达到稳定转化期需要30-40 d时间。同时，在实验室条件下蛋白质的产率依然与工业需求相差较大（工业蛋白质产率为1 g L⁻¹ h⁻¹），进一步放大预计可以提高蛋白质产率，但该工艺的放大情况未见报道，仍不清楚。接下来，获得适合实际气态碳源转化的菌种以及工艺放大情况评估是研究重点。

4 ADPtP过程中的资源整合与利用

4.1 沼气资源整合与利用

富含CH₄的沼气可以为培养MOB提供低成本的碳源，但其中含有占比40%-45%的CO₂以及少量的H₂S。目前的研究表明电化学可以将真实的沼气流（具有波动性）中的CO₂升级并分离，该技术具有较好的稳定性，Acosta等利用电化学将沼气升级，阴极气体成分为54.08%H₂、40.61%CH₄，以及少量的N₂与O₂^[6]。但需要注意的是，CO₂在低负荷时转化率较低，而在高负荷时导致pH较低，以HCO₃⁻形式存在，需要控制电解池内pH值为8.0左右，转化率可以达到99.9%。此外，沼气常用于燃烧产电、产热，经燃烧转化为CO₂，可被作为无机碳源利用HOB在氢气环境下将其转化为蛋白质，而CO₂转化为有机碳可以被酵母菌利用富集SCP。

利用沼气作为碳源获取SCP具有较高的环境效益。通过对利用沼气生产不同生物质的工艺进行生命周期评价分析发现，将沼气升级后进一步生产SCP在对人类健康影响、资源回收方面具有比其他生产工艺（产生物琥珀酸、产乙酸）更优越的环境效益，采用沼气升级比热电联产工艺每吨原料可减少CO₂排放当量70 kg/t，一次能源消耗节省6 454 MJ/t。但同时也发现，目前利用沼气产SCP的整体环境效益并非最佳方案，在减少CO₂排放当量以及对生态系统、气候改变方面需要进一步提高^[43]。此外，利用沼气作为碳源培养微生物获取SCP存在的主要限制是H₂S对菌株的毒害作用，研究表明当Na₂S浓度超过5.73 mg/L时会对MOB的生长产生抑制作用，产物中必需氨基酸在总氨基酸中占比下降；当达到8.13 mg/L时，产物中总氨基含量显著下降^[44]。提高SCP产量、减少硫化物毒害作用是解决上述问题的主要方法，现有方法包括优化C/O比例（6:4）与通气方式（连续式），提高搅拌速率与接种比例等。

4.2 消化液资源回收利用

在ADPtP工艺中，氮源的主要来源是消化液，经厌氧消化处理后消化液中氮源将高于处理前底物，如何合理利用消化液中氮源是保证工艺最终蛋白质产量的重要问题。电化学提氨是回收消化液中氮源的有效途径，该方法具有较高提取效率，且提取氮源的纯度高。例如，Khoshnevisan等进行了耦合电化学提氨与培养MOB获得SCP的研究，利用双室电化学电解池在3-3.5 V电压条件下可以将消化液中31%-51%的氮回收，作为氮源培养MOB后获得0.49 ± 0.01 g/L的生物质^[24]。并且，双室电化学电解池的阳离子交换膜避免了消化液中痕量化学物质随氮提取过程而转移，因此该法适用于其他种类的复杂消化液提氮。

为进一步提高电化学系统对氮的回收，可以利用Donnan透析，当施加电流时，阴极电解质和进料溶液之间形成阳离子浓度梯度，此时阳离子（Na⁺、K⁺、NH₄⁺、H⁺）转移到阴极。当不施加电流时，由于浓度差异，阳离子（Na⁺和K⁺）从阴极扩散回进料溶液，交换为其他阳离子（NH₄⁺和H⁺）以保持电中性，由此提高了氨氮的分离效率。研究表明，该法可以提高约10%的提取率，引入Donnan透析的体系提取单位质量氮的能耗在7.8-10.1 kJ/g之间^[45]。

4.3 可再生电电解水产H₂

ADPtP过程利用的氢气主要是通过低温/高温电解水产的H₂提供，利用可再生能源产生电能，然后电解水产氢气。电解水产氢气主要有3种方式^[46-47]：碱性电解AEC（alkaline electrolysis cells）、PEM（proton exchange membrane）电解、SOEC（solid oxide electrolysis cell）电解。前两种为低温电解，最后一种为高温电解，其中低温电解比较常见。

碱性电解AEC：目前成本较低，约1300 €/kWel（2017年），预计2050年成本将降到500 €/kWel^[48]。Schmidt等研究表明，ACE的成本为1000-1200 €/kWel，碱性电解是目前最成熟的技术，具有最低的特定投资和维护成本，可提供高达6 MWe的单堆容量^[49]，但是AEC的最小负荷将标准氢的生产限制在10%-40%^[50]。

PEM电解：需要加装质子交换膜，成本高于AEC电解，2017年成本为1000-2 300 €/kWel^[49]，预计到2050年成本将下降75%，达到与AEC相同的成本^[48]。与ACE电解相比的优势为设计紧凑，加压操作使得H₂单位产能能耗低。德国的一家名为MicrobEnergy的公司进行了BioPower2Gas项目，实验阶段使用了180 MWe的PEM电解槽，氢气产能预计为30 Nm³/h^[51]。

SOEC电解：属于高温电解，电解温度为400-800 °C^[52]，电解成本昂贵，2017年成本为3570 €/kWel。但是这种电解产氢气效率高，生产1 Nm³的H₂仅需要3 kWh电能，同样条件下AEC与PEM的能耗为4.2-4.8 kWh、4.4-5 kWh。虽然这种方法还处于研究阶段，但是随着技术的不断研发，未来有望继续降低24%的成本^[49]。SOEC的另一个优势是可以将电解产H₂与甲烷化集成，Sunfire公司的HELMETH项目^[53]中，电解将在800 °C和15 bar（1.5 × 10⁶ Pa）工作条件下的15kW SOEC中进行，而甲烷化过程将由两个300 °C、30 bar（3 × 10⁶ Pa）串联反应器组成，最终产气达到5.4 m³/h（60 kW）^[54]。

5 ADPtP在我国的应用前景

我国沼气当前及潜在产量巨大，同时国家政策与指导方针将不断促进沼气行业发展。随着我国可再生能源的发展、双碳环境生态政策的实施以及蛋白质的潜在巨大需求，未来ADPtP工艺在我国作为新型绿色蛋白质生产工艺而施行具有良好基础与前景。

根据预测，2030年我国生物质产量将突破35亿吨，2060年突破50亿吨。据国家能源局统计，2017年秸秆产量为9亿吨，实际用于沼气生产的秸秆量为1.8亿吨；畜禽粪便资源产量为24.6亿吨，其中约10.64亿吨被用于生产沼气；食品加工产生的副产品、水果和蔬菜废弃物以及农村生活垃圾总量分别为2.1、2.6和0.8亿吨，其中0.2、1.14和0.3亿吨分别用于产沼气，最终年沼气产量达到19 Gm³；此外，我国拥有巨大的潜在原材料资源储备和巨大的关联资源，生物气产量具有巨大的开发潜力，以2017年为例，当年沼气产量仅相当于理论产量的15%^[55]。

2016年,国家能源局发布了《生物质能发展第十三个五年规划》,到2020年实现生物质能的大规模利用和商业化^[56]。2017年,农业农村部制定了《国家农村沼气发展“十三五”规划》,将沼气纳入国家能源和生态战略^[57]。2019年,国家能源局发布了《促进生物甲烷产业化的指导方针》,计划到2030年我国的沼气年产量将超过30 Gm³^[58]。

近些年我国可再生能源发展如火如荼,“十二五”期间已经开始建设120 GW的水电站和70 GW的风力发电能机组,并计划在西北和西南地区建设5 GW的太阳能发电站。根据国际可再生能源署(IREA, www.irena.org/statistics)的数据,2018年全球可再生能源发电总量为6 587 TWh,我国产量最高,约占1/3。此外,我国大力支持发展大型风力发电机组及零部件、新型高效太阳能发电及热利用组件、生物质能转化利用技术等新能源产业。2018年全球前十大风电机组制造商中,我国企业占4家,总市场份额约30%^[59]。2018年,我国可再生能源发电装机容量排名世界第一,达到708 GW,超过第二位欧盟(216.6 GW)^[60]。可再生能源迅速发展的同时,由于可再生能源发电不稳定,如何将可再生能源产生的余电储存是面临的重要问题。未来,ADPtP作为一种可再生能源储存技术将会受到关注。

随着发电总量的增加和技术水平的提高,可再生能源发电成本持续下降。根据国家电网《新能源发电分析报告》,陆上风电成本已降至0.32-0.46元/kWh。西部地区大型地面光伏发电厂的成本和东部地区光伏发电的成本均较低,分别为0.7-0.9元/kWh和0.9-1.2元/kWh。“十四五”期间,我国陆上风电将实现完全平价。电价的继续降低可以进一步降低ADPtP的工艺成本,提高产物蛋白质的竞争力。

从生态环境政策角度看,我国制定了应对气候变化的碳排放目标,即到2030年达到碳排放峰值,力争到2060年实现碳中和^[61]。依靠传统农业生产供应蛋白质碳足迹高,我国农业生产产生的温室气体(CO₂, CH₄等)占16%-17%^[62]。提供优质蛋白质的奶牛的CH₄排放量最大,占农业总排放量的3.8%。2011年以来,农业农村部提出《关于进一步加强农业农村节能减排工作的意见》,大力推进生态农业、循环农业等

低碳模式^[63]。ADPtP可作为一种低碳农业模式替代部分传统农业生产蛋白质,符合政策要求,是实现碳排放目标的可取方式。

从20世纪80年代至今,欧洲和北美已经建立了一批生产单细胞蛋白质的公司,并将注册为品牌的产品投放市场,其中一些实现了盈利^[10]。目前,全球市场上的单细胞蛋白质产品有Quarn™^[64]、Solein(<https://solarfoods.fi/>)、Proton™(<https://www.kiverdi.com/>)等。我国拥有人口红利,对食品有着巨大的需求。我国有一些食用单细胞蛋白质案例,如单细胞蛋白质被添加到健美人士食用的蛋白粉中或鱼虾饲料中(www.wdlgsw.cn),但没有知名品牌的单细胞蛋白质产品,开拓我国市场将会极大拓展单细胞蛋白质消费市场。我国居民对食品的色、味、安全性要求极高,改进单细胞蛋白质的加工方法,获得适合中国人饮食习惯的产品是其应用关键。

6 结论与展望

目前,基于厌氧消化的“电转蛋白质”(ADPtP)工艺模式包括:(1)电化学还原模式,(2)CBB循环模式,(3)W-L途径模式。电化学还原模式固碳效率较高,但电化学过程中使用的催化剂、电极材料以及整套装置较为复杂。CBB循环模式氮源转化率较高,因此产物蛋白质含量较高;但该模式利用酶催化固碳,因此效率低,此外氢气溶解度低限制了转化效率。W-L途径模式利用两级反应器依次完成固碳和微生物富集获得单细胞蛋白质,与CBB循环模式相比能量转化率较高且提高了安全性,但与电化学还原模式相比固碳效率则较低。此外,现有研究通过在上述不同工艺的转化过程中引入电化学,高效促进了可再生电对沼气、沼液以及水资源的整合与利用。

基于我国沼气产量高以及可再生电产量丰富的现状,利用ADPtP将可再生能源转化为蛋白质可以为食品/饲料生产提供一条绿色可持续途径。该途径符合我国环境生态政策以及对蛋白质的潜在巨大需求,存在替代传统农业生产蛋白质方式的潜力,最终将形成一条资源循环利用、高质化产品生产以及可再生能源转化的综合生产线,具有十分广阔的应用前景。

参考文献 [References]

- Sharif M, Zafar MH, Aqib Al, Muhammad S, Mayada RF, Mahmoud A. Single cell protein: sources, mechanism of production, nutritional value and its uses in aquaculture nutrition [J]. *Aquaculture*, 2021, **531**: 735885
- Gravel A, Doyen A. The use of edible insect proteins in food: Challenges and issues related to their functional properties [J]. *Innov Food Sci Emerg Technol*, 2020, **59**: 102272
- Okagu OD, Ver Ma O, McClements DJ, Udenigwe CC. Utilization of insect proteins to formulate nutraceutical delivery systems: Encapsulation and release of curcumin using mealworm protein-chitosan nano-complexes [J]. *Int J Biol Macromol*, 2020, **151**: 333-343
- Worgan JT. 11-Protein production by micro-organisms [M]//Norton G. *Plant Proteins*. New York: Butterworth-Heinemann, 1977: 191-203
- Kargi F, Shuler ML. A mixed yeast-bacteria process for the aerobic conversion of poultry waste into single-cell protein [J]. *Biotechnol Lett*, 1981, **3** (8): 409-414
- Acosta N, Sakarika M, Kerckhof FM, Law CY, Vrieze JD, Rabaey K. Microbial protein production from methane via electrochemical biogas upgrading [J]. *Chem Eng J*, 2020, **391**: 123625
- Zhu WZ, He QY, Gao H, Saoharit N, Nitayavardhana S, Xie L. Bioconversion of yellow wine wastes into microbial protein via mixed yeast-fungus cultures [J]. *Bioresour Technol*, 2019, **299**: 122565
- Morowvat MH, Ghasemi Y, Rasoul-Amini S. Algae for the production of SCP [M]//Liong MT. *Bioprocess Sciences and Technology*. New York: Nova Science, 2011: 163-186
- Waterworth DG. Single cell protein [J]. *Outlook Agric*, 1981, **10** (8): 403-408

- 10 Molitor B, Mishra A, Angenent LT. Power-to-Protein: converting renewable electric power and carbon dioxide into single cell protein with a two-stage bioprocess [J]. *Energy Environ Sci*, 2019, **12** (12): 3515-3621
- 11 Matassa S, Boon N, Verstraete W. Resource recovery from used water: the manufacturing abilities of hydrogen-oxidizing bacteria [J]. *Water Res*, 2015, **68**: 467-478
- 12 Mishra A, Ntihuga JN, Molitor B, Angenent LT. Power-to-Protein: carbon fixation with renewable electric power to feed the world [J]. *Joule*, 2020, **4** (6): 1142-1147
- 13 Hashimoto K. Metastable metals for “green” materials for global atmosphere conservation and abundant energy supply [J]. *Mater Sci Eng A*, 1994, **179-180** (part-P1): 27-30
- 14 Oreggioni GD, Luberti M, Reilly M, Kirby ME, Toop T, Theodorou M, Tassou SA. Techno-economic analysis of bio-methane production from agriculture and food industry waste [J]. *Energy Proc*, 2017, **123**: 81-88
- 15 Negri C, Ricci M, Zilio M, D'Imporzano G, Qiao W, Dong RJ, Adani F. Anaerobic digestion of food waste for bio-energy production in China and Southeast Asia: a review [J]. *Renew Sustain Energy Rev*, 2020, **133**: 110138
- 16 Matassa S, Papirio S, Pikaar I, Hülsen T, Leijenhorst E, Esposito G, Pirozzi F, Willy V. Upcycling of biowaste carbon and nutrients in line with consumer confidence: the “full gas” route to single cell protein [J]. *Green Chem*, 2020, **22** (15): 4912-4929
- 17 Chong CC, Cheng YW, Ishak S, Lam MK, Lim JW, Tan IS, Show PL, Lee KT. Anaerobic digestate as a low-cost nutrient source for sustainable microalgae cultivation: a way forward through waste valorization approach [J]. *Sci Total Environ*, 2022, **803** (10): 150070
- 18 徐文倩, 董红敏, 陈永杏, 尚斌, 陶秀萍, 张万钦. 含固率和接种比对猪粪中温厌氧消化特性的影响[J]. 中国农业气象, 2017, **38** (5): 292-300 [Xu WQ, Dong HM, Chen YX, Shang B, Tao XP, Zhang WQ. Effects of total solids content and inoculation ratio on anaerobic digestion of swine manure [J]. *Chin J Agrometeorol*, 2017, **38** (5): 292-300]
- 19 Tan XB, Yang LB, Zhang WW, Zhao XC. Lipids production and nutrients recycling by microalgae mixotrophic culture in anaerobic digestate of sludge using wasted organics as carbon source [J]. *Bioresour Technol*, 2020, **297**: 122379
- 20 Lu J, Xu SY. Post-treatment of food waste digestate towards land application: a review [J]. *J Clean Prod*, 2020, **303** (20): 127033
- 21 Logan M, Visvanathan C. Management strategies for anaerobic digestate of organic fraction of municipal solid waste: current status and future prospects [J]. *Waste Manag Res*, 2019, **37** (1): 27-39
- 22 Sillman J, Uusitalo V, Ruuskanen V, Ojala L, Ahola J. A life cycle environmental sustainability analysis of microbial protein production via Power-to-Food approaches [J]. *Int J Life Cycle Assess*, 2020, **25**: 2190-2203
- 23 Matassa S, Boon N, Pikaar I, Verstraete W. Microbial protein: future sustainable food supply route with low environmental footprint [J]. *Microb Biotechnol*, 2016, **9** (5): 568-575
- 24 Khoshnevisan B, Dodds M, Tsapekos P, Torresi E, Smets BF, Angelidaki I, Zhang YF, Valverde-Pérez B. Coupling electrochemical ammonia extraction and cultivation of methane oxidizing bacteria for production of microbial protein [J]. *J Environ Manage*, 2020, **265**: 110560
- 25 Christiaens MER, Gildemyn S, Matassa S, Ysebaert T, Vrieze JD, Rabaey K. Electrochemical Ammonia recovery from source-separated urine for microbial protein production [J]. *Environ Sci Technol*, 2017, **51** (22): 13143-13150
- 26 Tsapekos P, Khoshnevisan B, Zhu XY, Zha X, I Angelidaki I. Methane oxidising bacteria to upcycle effluent streams from anaerobic digestion of municipal biowaste [J]. *J Environ Manag*, 2019, **251**: 109590
- 27 Rasouli Z, Valverde-Pérez B, D'Este M, Franciscia DD, Angelidaki I. Nutrient recovery from industrial wastewater as single cell protein by a co-culture of green microalgae and methanotrophs [J]. *Biochem Eng J*, 2018, **134** (15): 129-135
- 28 Yazdian F, Hajizadeh S, Shojaosadati SA, Khalilzadeh R, Nosrati M. Production of single cell protein from natural gas: Parameter optimization and RNA evaluation [J]. *Iran J Biotechnol*, 2005, **3** (4): 235-242
- 29 Kroth PG. The biodiversity of carbon assimilation [J]. *J Plant Physiol*, 2015, **172**: 76-81
- 30 Rasigraf O, Kool DM, Jetten M, Damste JS, Ettwig KF. Autotrophic carbon dioxide fixation via the Calvin-Benson-Bassham cycle by the denitrifying methanotroph “*Candidatus Methyloirabilis oxyfera*” [J]. *Appl Environ Microbiol*, 2014, **80** (8): 2451-2460
- 31 De Souza YA, Rosado AS. Chapter 19-Opening the black box of thermophilic autotrophic bacterial diversity [M]//Das S, Dash HR. *Microbial Diversity in the Genomic Era*. New York: Academic Press, 2019: 333-343
- 32 Hu XN, Kerckhof FM, Ghesquière J, Bernaerts K, Boon N. Microbial protein out of thin air: fixation of nitrogen gas by an autotrophic hydrogen-oxidizing bacterial enrichment [J]. *Environ Sci Technol*, 2020, **54** (6): 3609-3617
- 33 Morinaga Y, Yamanaka S, Ishizaki A, Hirose Y. Growth characteristics and cell composition of *Alcaligenes eutrophus* in chemostat culture [J]. *Agric Biol Chem*, 1978, **42** (2): 439-444
- 34 Mukherjee S, Bassler BL. Bacterial quorum sensing in complex and dynamically changing environments [J]. *Nat Rev Microbiol*, 2019, **17** (6): 371-382
- 35 Matassa S, Verstraete W, Pikaar I, Boon N. Autotrophic nitrogen assimilation and carbon capture for microbial protein production by a novel enrichment of hydrogen-oxidizing bacteria [J]. *Water Resear*, 2016, **101**: 137-146
- 36 Siegel RS, Ollis DF. Kinetics of growth of the hydrogen-oxidizing bacterium *Alcaligenes eutrophus* (ATCC 17707) in chemostat culture [J]. *Biotechnol Bioeng*, 1984, **26** (7): 764-770
- 37 Erb TJ, Zarzycki J. A short history of RubisCO: the rise and fall (?) of Nature's predominant CO₂ fixing enzyme [J]. *Curr Opin Biotechnol*, 2018, **49**: 100-107
- 38 Guillaume B, Adam PS, Simonetta G. Methanogenesis and the Wood–Ljungdahl pathway: an ancient, versatile, and fragile association [J]. *Genome Biol Evol*, 2016, **8** (6): 1706-1711
- 39 Ragsdale SW, Pierce E. Acetogenesis and the Wood–Ljungdahl pathway of CO₂ fixation [J]. *Biochim Biophys Acta (BBA) - Prot Proteom*, 2008, **1784** (12): 1873-1898
- 40 Richter H, Martin M, Angenent L. A two-stage continuous fermentation system for conversion of syngas into ethanol [J]. *Energies*, 2013, **6**: 3987-4000
- 41 Qu YB, Chen HZ, Gao PJ. SCP production from steam exploded hemicellulose autohydrolysate by *Trichosporon cutaneum* [J]. *J Ferment Bioeng*, 1992, **73**: 386-389
- 42 Magalhães CB, Souza-Neto MS, Astolfi-Filho S, Matos IR. *Candida tropicalis* able to produce yeast single cell protein using

- sugarcane bagasse hemicellulosic hydrolysate as carbon source [J]. *Biotechnol Res Innov*, 2018, **2** (1): 19-21
- 43 Khoshnevisan B, Tabatabaei M, Tsapekos P, Rafiee S, Aghbashlo M, Lindeneg S, Angelidaki I. Environmental life cycle assessment of different biorefinery platforms valorizing municipal solid waste to bioenergy, microbial protein, lactic and succinic acid [J]. *Renew Sust Energ Rev*, 2020, **117**: 109493
- 44 Xu MY, Zhou HH, Yang XY, Angelidaki I, Zhang YF. Sulfide restrains the growth of *Methylocapsa acidiphila* converting renewable biogas to single cell protein [J]. *Water Res*, 2020, **184**: 116138
- 45 Rodrigues M, Sleutels T, Kuntke P, Hoekstra D, Heijne AT, Buisman CJN, Hamelers HVM. Exploiting Donnan dialysis to enhance ammonia recovery in an electrochemical system [J]. *Chem Eng J*, 2020, **395**: 125143
- 46 Bailera M, Lisbona P, Romeo L M, Espatolero S. Power to Gas projects review: Lab, pilot and demo plants for storing renewable energy and CO₂ [J]. *Renew Sust Energ Rev*, 2017, **69**: 292-312
- 47 Buttler A, Spliethoff H. Current status of water electrolysis for energy storage, grid balancing and sector coupling via Power-to-Gas and Power-to-Liquids: a review [J]. *Renew Sust Energ Rev*, 2018, **83**: 2440-2454
- 48 Thema M, Bauer F, Sterner M. Power-to-Gas: electrolysis and methanation status review [J]. *Renew Sust Energ Rev*, 2019, **112**: 775-787
- 49 Schmidt O, Gambhir A, Staffell I, Hawkes A, Nelson J, Few S. Future cost and performance of water electrolysis: an expert elicitation study [J]. *Int J Hydrom Energy*, 2017, **42** (52): 30470-30492
- 50 Bassano C, Deiana P, Lietti L, Visconti CG. P2G movable modular plant operation on synthetic methane production from CO₂ and hydrogen from renewable sources [J]. *Fuel*, 2019, **253**: 1071-1079
- 51 Dotzauer M, Pfeiffer D, Lauer M, Pohl M, Mauky E, Bär K, Sonnleitner M, Zörner W, Hudde J, Schwarz B, Faßauer B, Dahmen M, Rieke C, Herbert J, Thrän D. How to measure flexibility-Performance indicators for demand driven power generation from biogas plants [J]. *Renew Energ*, 2019, **134**: 135-146
- 52 Ancona MA, Antonioni G, Branchini L, Pascale AD, Melino F, Orlandini V, Antonucci V, Ferraro M. Renewable energy storage system based on a Power-to-Gas conversion process [J]. *Energ Procedia*, 2016, **101**: 854-861
- 53 Gruber M, Weinbrecht P, Biffar L, Harth S, Trimis D, Brabandt J, Posdziech O, Blumentritt R. Power-to-Gas through thermal integration of high-temperature steam electrolysis and carbon dioxide methanation - experimental results [J]. *Fuel Process Technol*, 2018, **181**: 61-74
- 54 De Colvenaer B, Castel C. The Fuel Cells and Hydrogen Joint Undertaking (FCH JU) in Europe [J]. *Int J Low-Carbon Technol*, 2012, **7** (1): 5-9
- 55 Song JH, Wang Y, Zhang SQ, Song YL, Xue SR, Liu L, Lv XG, Wang XJ, Yang GH. Coupling biochar with anaerobic digestion in a circular economy perspective: a promising way to promote sustainable energy, environment and agriculture development in China [J]. *Renew Sust Energ Rev*, 2021, **144**: 110973
- 56 国家能源局. 生物质能发展“十三五”规划[EB/OL]. 2016 (2016-12-06) [2021-09-20]. http://www.gov.cn/xinwen/2016-12/06/content_5143612.htm [National Energy Administration of China. 13th Five-Year Plan for Biomass Energy Development [EB/OL]. 2016 (2016-12-06) [2021-09-20]. http://www.gov.cn/xinwen/2016-12/06/content_5143612.htm]
- 57 国家发展和改革委员会、农业农村部. 全国农村沼气发展“十三五”规划[EB/OL]. 2017 (2017-02-10) [2021-09-20]. http://www.gov.cn/xinwen/2017-02/10/content_5167076.htm [National Development and Reform Commission of China, Ministry of Agriculture and Rural Affairs of China. National 13th Five-Year Plan for Rural Biogas Development [EB]. 2017 (2017-02-10) [2021-09-20]. http://www.gov.cn/xinwen/2017-02/10/content_5167076.htm]
- 58 国家能源局. 关于促进生物天然气产业化发展的指导意见[EB/OL]. 2019 (2019-12-04) [2021-09-20]. http://www.gov.cn/zhengce/zhengceku/2019-12/26/content_5464147.htm [National Energy Administration of China. Guidelines on promoting the industrialization of biomethane [EB/OL]. (2019-12-04) [2021-09-20]. http://www.gov.cn/zhengce/zhengceku/2019-12/26/content_5464147.htm]
- 59 Huang QL. Insights for global energy interconnection from China renewable energy development [J]. *Glob Energy Int*, 2020, **3** (1): 1-11
- 60 IRENA. Renewable capacity statistics 2019 [R]. Berlin, 2019
- 61 Li YN, Lan S, Ryberg M, Pérez-Ramírez J, Wang XN. A quantitative roadmap for China towards carbon neutrality in 2060 using methanol and ammonia as energy carriers [J]. *iScience*, 2021, **24** (6): 102513
- 62 Tian Y, Zhang JB, Bo LI. Research on spatial-temporal characteristics and factor decomposition of agricultural carbon emission based on input angle—taking Hubei Province for example [J]. *Res Agric Modern*, 2011, **32** (6): 752-755
- 63 农业农村部. 农业部关于进一步加强农业和农村节能减排工作的意见[EB/OL]. 2011 (2011-12-10) [2021-09-20]. http://www.moa.gov.cn/hybgb/2011/dseq/201805/t20180524_6143001.htm [Ministry of Agriculture and Rural Affairs of China. Opinions of the Ministry of Agriculture on Further strengthening energy conservation and emission reduction in agriculture and rural areas [EB/OL]. (2011-12-10) [2021-09-20]. http://www.moa.gov.cn/hybgb/2011/dseq/201805/t20180524_6143001.htm]
- 64 Wiebe MG. Quorn™ Myco-Protein-overview of a successful fungal product [J]. *Mycologist*, 2004, **18** (1): 17-20