



Título del Trabajo Fin de Máster:

**<ESTUDIO EN PLANTA PILOTO DE LA  
APLICACIÓN DE LA TECNOLOGÍA DE  
MEMBRANAS PARA EL TRATAMIENTO  
ANAEROBIO DE AGUAS RESIDUALES  
URBANAS. ESTUDIO DE LAS  
CONDICIONES CRÍTICAS DE  
FILTRACIÓN.>**

Intensificación:

**TRATAMIENTO DE AGUAS**

Autor:

**<JIMÉNEZ BENÍTEZ, ANTONIO>**

Director/es:

**<DR. FERRER POLO, JOSÉ  
ROBLEZ MARTÍNEZ, ÁNGEL>**

Fecha: **<SEPTIEMBRE, 2012>**

## ÍNDICE

1. RESUMEN.....	3
2. INTRODUCCIÓN.....	9
2.1. El tratamiento de aguas residuales.....	11
2.1.1. Contaminantes presentes en un agua residual urbana (ARU).....	11
2.1.2. Procesos de tratamiento de ARU.....	11
2.1.3. Metabolismo de degradación biológica de la materia orgánica.....	14
2.2. Tecnología de separación con membranas.....	17
2.2.1. Clasificación de los procesos de membrana.....	17
2.2.2. Mecanismos de filtración.....	20
2.2.3. Tipos de membranas.....	22
2.2.4. Módulos de membrana.....	24
2.2.5. Ensuciamiento (fouling).....	26
2.2.6. Flujo crítico.....	28
2.2.7. Método de flujo escalonado.....	29
2.3. La tecnología SAnMBR ( <i>Submerged anaerobic membrane bio-reactor</i> )	30
3. OBJETIVOS.....	35
4. MATERIALES Y MÉTODOS.....	39
4.1. Descripción de la planta piloto.....	41
4.2. Funcionamiento de los módulos de membrana.....	46
4.3. Instrumentación, control y automatización de la planta piloto.....	48
4.3.1. Instrumentación de la planta piloto.....	48
4.3.2. Control de la planta piloto.....	50
4.3.3. Automatización y monitorización de la planta piloto.....	51
4.4. Métodos analíticos.....	52
4.5. Operación de la planta piloto.....	53
4.6. Método de flujo escalonado modificado.....	53
4.7. Cálculo de los parámetros de filtración.....	56
4.8. Regeneración química de las membranas.....	58
5. RESULTADOS Y DISCUSIÓN.....	59
5.1. Ensayos puntuales de filtración: determinación de las condiciones críticas de filtración.....	61

<b>5.1.1. Influencia del flujo transmembrana (<math>J</math>) sobre la presión transmembrana media (<math>PTM_{med}</math>).....</b>	<b>61</b>
<b>5.1.2. Influencia de <math>J</math> sobre la permeabilidad media (<math>K_{med}</math>).....</b>	<b>65</b>
<b>5.1.3. Influencia de <math>J</math> sobre la resistencia total media (<math>R_T</math>).....</b>	<b>69</b>
<b>5.1.4. Influencia de <math>J</math> sobre la velocidad de ensuciamiento.....</b>	<b>72</b>
<b>5.1.5. Influencia del caudal de biogás sobre el flujo crítico (<math>J_c</math>).....</b>	<b>75</b>
<b>5.1.6. Influencia de la concentración de sólidos totales sobre el <math>J_c</math>.....</b>	<b>77</b>
<b>5.1.7. Establecimiento de las condiciones críticas de filtración.....</b>	<b>78</b>
<b>5.1.8. Método del flujo escalonado para la determinación de la componente de ensuciamiento irreversible de las membranas.....</b>	<b>79</b>
<b>5.1.9. Método del flujo escalonado para la determinación de la componente de ensuciamiento irrecuperable de las membranas.....</b>	<b>81</b>
<b>5.2. Revisión bibliográfica de resultados en la determinación de flujos críticos.....</b>	<b>90</b>
<b>5.3. Evolución del comportamiento de la membrana a largo plazo.....</b>	<b>92</b>
<b>6. CONCLUSIONES.....</b>	<b>99</b>
<b>7. BIBLIOGRAFÍA.....</b>	<b>105</b>

## **1. RESUMEN**



## **1. RESUMEN**

La degradación medioambiental sucedida en las últimas décadas asociada al crecimiento de la población a escala mundial, el desarrollo económico basado en el consumo de recursos de manera insostenible y el incremento masivo de la generación de agentes contaminantes, han generado una corriente de sensibilización medioambiental por parte de los ciudadanos. Esta evolución ha supuesto que cada vez más se reclame, tanto a los agentes económicos como a los sociales y políticos, un cambio en el paradigma del desarrollo con el fin de que éste no se lleve a cabo a costa de destruir el entorno.

Si bien es cierto que las medidas encaminadas a prevenir la contaminación derivada de la actividad humana suponen cambios en los procesos productivos en su origen, también se hace necesario avanzar en el tratamiento de los vertidos que estas actividades generan, con el fin de que su descarga en el medio no ponga en riesgo el ecosistema. Desde esta perspectiva, el desarrollo sostenible presenta como principal objetivo la definición de proyectos viables que permitan la reconciliación de los aspectos económicos, sociales y ambientales de la totalidad de las actividades humanas. La justificación del modelo de desarrollo sostenible se basa, tanto en la existencia de unos recursos limitados y susceptibles de agotarse (nutrientes, agua potable, minerales, etc.), como en el hecho de que la creciente actividad industrial, sin más criterio que el beneficio económico, provoca, tanto a escala local como global, graves problemas medioambientales que pueden llegar a ser irreversibles.

Concretamente, en el caso del tratamiento de aguas residuales, los tratamientos convencionales más utilizados, como son los tratamientos biológicos aerobios basados en fangos activados, suponen elevados consumos energéticos asociados a la necesaria aireación del proceso. La demanda energética para operar un sistema de fangos activados varía entre  $0,3 \text{ kWh}\cdot\text{m}^{-3}$  y  $0,7 \text{ kWh}\cdot\text{m}^{-3}$ , representando entre el 54% y el 97% del consumo energético total de la planta de tratamiento (Lester *et al.*, 2009). Al impacto derivado del consumo energético debe añadirse también un contexto de encarecimiento de la energía a escala mundial, lo cual supone un aumento significativo en los costes de operación de este tipo de instalaciones. Por último, la propia naturaleza de los microorganismos aerobios involucrados en estos procesos, con altas tasas de rendimiento en la eliminación de materia orgánica, implica una gran producción de residuos en forma de fango de depuradora que deben ser correctamente gestionados.

Es por esto que se hace necesaria la implementación de nuevos sistemas de tratamiento más sostenibles, de menor coste económico y energético, y de menor impacto ambiental. Dentro de las posibles opciones que cumplen con estos criterios se encontrarían los procesos de tratamientos anaerobios de aguas residuales urbanas.

Sin embargo, existen limitaciones, asociadas a la aplicación de procesos de tratamiento anaerobio a bajas temperaturas (propias de la mayoría de los países desarrollados), que han de ser superadas, tales como las inferiores velocidades de crecimiento que presenta la biomasa anaerobia frente a otros grupos de microorganismos (bacterias heterótrofas, bacterias autótrofas, etc.), o la baja sedimentabilidad de los fangos generados.

La combinación de un proceso anaerobio de degradación de la materia orgánica y de un proceso de filtración y separación mediante membrana, permite superar los inconvenientes mencionados, representando una tecnología de futuro que podría desplazar al tradicional sistema de fangos activados como principal tecnología de tratamiento de depuración de aguas residuales urbanas. Gracias a esta combinación es posible establecer fácilmente tiempos de retención celular elevados sin necesidad de incrementar el volumen de reacción necesario para llevar a cabo el proceso, permitiendo por tanto el desacople entre tiempo de retención celular y tiempo de retención hidráulico. Además, mediante los reactores de membrana, el proceso de tratamiento y de separación queda integrado en una misma unidad, proporcionando no solo un efluente de elevada calidad gracias a la gran capacidad de retención, sino estableciendo también una reducción del espacio total requerido.

Por otra parte, el uso de membranas como elemento de separación de la biomasa supone un nuevo reto tecnológico, puesto que su principal inconveniente deriva de su tendencia al ensuciamiento (*fouling*) progresivo a medida que avanza el proceso de filtración. Durante este proceso, los sólidos presentes en el agua tienden a formar una torta sobre la superficie de la membrana que añade una resistencia adicional a la filtración, de manera que cada vez es necesario aplicar una mayor fuerza impulsora (presión transmembrana) para mantener un caudal de permeado dado. Llegado a un punto, las necesidades de presión son demasiado elevadas (o el caudal de permeado demasiado bajo) y debe pararse el proceso de filtración. El ensuciamiento obliga, por tanto, a establecer estrategias de operación que incluyan contralavados de la membrana, relajación y/u otras posibles etapas cíclicas para favorecer el desprendimiento de la torta de sólidos de la superficie de la membrana. Este tipo de etapas supone que la rentabilidad del proceso disminuya, ya que la filtración se interrumpe y además deben añadirse los costes derivados del equipo adicional y la operación de las nuevas etapas no productivas del ciclo.

También resulta un problema añadido el hecho de que el ensuciamiento pueda convertirse en irreversible bajo ciertas condiciones de filtración. Un ensuciamiento irreversible supone que la secuencia de etapas destinadas a desprender la torta ya no es capaz de recuperar la totalidad de la capacidad filtrante de la membrana. El ensuciamiento irreversible de la membrana resulta en una disminución del rendimiento del proceso, ya que supone mayores gradientes de presión para obtener un mismo caudal de permeado, lo cual se traduce en un

mayor gasto energético. Por tanto, prevenir la aparición de ensuciamiento irreversible debe ser una de las metas de la estrategia de operación de los sistemas de separación por membranas.

Con el fin de establecer las condiciones de operación bajo las cuales el ensuciamiento irreversible no se produce o es mínimo, se desarrolló el concepto de flujo crítico (Field *et al.*, 1995). En la bibliografía es posible encontrar diferentes métodos para establecer las condiciones críticas de filtración, siendo el conocido como "*Flux-step method*" (traducido en este trabajo como *método de flujo escalonado*) el más habitual (Le-Clech *et al.*, 2003; Giuglielmi *et al.*, 2007; van der Marel *et al.*, 2009; Robles *et al.*, 2012). Este método permite establecer el flujo crítico en un amplio rango de condiciones de operación, especialmente bajo diferentes concentraciones de sólidos totales en el licor mezcla (STLM) y diferentes caudales de gas insuflados al tanque de membranas. Estos dos parámetros han sido identificados como los que más afectan al flujo crítico.

Este Trabajo Fin de Máster pretende estudiar la influencia de la concentración de STLM y del caudal de gas insuflado al tanque de membranas en el comportamiento del proceso de filtración en un reactor anaerobio de membrana sumergida (SAnMBR, del inglés *Sumerged Anaerobic Membrane Bio-reactor*), particularmente en la formación de ensuciamiento. De esta manera, se establecerán las condiciones críticas de filtración para diferentes condiciones de operación mediante una modificación del método de flujo escalonado y se comprobará si el método es capaz de prevenir la formación del ensuciamiento irreversible a largo plazo.



## **2. INTRODUCCIÓN**



## **2. INTRODUCCIÓN**

### **2.1. El tratamiento de aguas residuales**

#### ***2.1.1. Contaminantes presentes en un agua residual urbana (ARU)***

El tratamiento de las aguas residuales tiene como objetivo eliminar, o al menos reducir, los niveles de los contaminantes presentes en las aguas que llegan a la planta depuradora. Esta contaminación, salvo que provenga de origen, es debida al uso que se da al agua desde que es captada hasta que llega a la instalación encargada de su depuración. De esta manera, las condiciones de su posterior vertido, ya sea al cauce de un río, al mar o a cualquier otro medio receptor, deben garantizar que no se producirá ningún efecto perjudicial que afecte al ambiente.

Los principales contaminantes que acompañan al agua son los siguientes:

- Materia orgánica (MO).
- Sólidos suspendidos (SS).
- Nutrientes, principalmente fósforo (P), nitrógeno (N) y azufre (S).

Además, en los últimos años han cobrado importancia los contaminantes conocidos como “emergentes”, derivados del uso de productos farmacéuticos y de higiene personal. Estos contaminantes presentan, en general, concentraciones mucho más bajas que los arriba enumerados, pero aún así son capaces de interferir en el correcto funcionamiento de los ecosistemas, al interactuar con el sistema hormonal y endocrino de los organismos que viven en él. Es por ello que poco a poco empiezan a aparecer en la legislación (por ejemplo en la Directiva Marco del Agua) como sustancias que deben ser objeto de seguimiento y control.

#### ***2.1.2. Procesos de tratamiento de ARU***

El sistema habitual de depuración de aguas en una planta de tratamiento consiste en una serie de etapas en las que, en base a procesos físicos, químicos y/o biológicos, se lleva a cabo la eliminación o separación de los contaminantes. La tabla 1 muestra las operaciones más habituales para el tratamiento de cada uno de los distintos tipos de contaminantes presentes en un agua residual.

Contaminante	Tratamiento	Clasificación
<i>Sólidos suspendidos</i>	Rejas	F
	Sedimentación	F
	Flotación	F
	Filtración	F
	Coagulación/sedimentación	Q/F
	Vertido sobre el terreno	F
<i>Compuestos orgánicos biodegradables</i>	Fangos activados	B
	Filtros percoladores	B
	Filtros rotativos	B
	Lagunas aireadas	B
	Estanques de estabilización	B
	Filtros de arena	F/B
	Vertido sobre el terreno	B/Q/F
<i>Organismos patógenos</i>	Cloración	Q
	Ozonización	Q
<i>Nitrógeno</i>	Nitrificación/desnitrificación	B
	Extracción de amoníaco	Q/F
	Cambio iónico	Q
	Cloración al "breakpoint"	Q
	Vertido sobre el terreno	B/Q/F
<i>Fósforo</i>	Eliminación biológica	B
	Coagulación con sal metálica/sedimentación	Q/F
	Coagulación con cal/sedimentación	Q/F
<i>Compuestos orgánicos no biodegradables</i>	Adsorción con carbón	F
	Ozonización terciaria	Q
<i>Metales pesados</i>	Precipitación química	Q
	Cambio iónico	Q
	Vertido sobre el terreno	F/Q
<i>Sólidos inorgánicos disueltos</i>	Cambio iónico	Q
	Ósmosis inversa	F
	Electrodialisis	Q

Tabla 1. Operaciones unitarias para la eliminación de los contaminantes en las ARU (F: física; Q: química; B: biológica)(Fuente: Polo, J et al. (2003)).

El número y disposición de estas etapas dependerá de las condiciones del agua afluente a la estación de depuración de aguas residuales (EDAR), del medio receptor tras su tratamiento y de condicionantes técnicos y económicos de operación. La legislación establece unos criterios de vertido y de calidad que deben cumplirse, en función de si se trata de zonas

más o menos sensibles a los contaminantes. El fin último es prevenir problemas de contaminación, como por ejemplo, la eutrofización.

La figura 1 muestra un ejemplo de una planta estándar de tratamiento de aguas residuales urbanas. El conjunto de procesos en los cuales el agua es tratada es conocido como línea de aguas. Se compone de un pretratamiento (enrejados, desarenadores, tanques de homogeneización, tratamiento físico y/o químico, decantadores primarios...) conducente a eliminar los materiales más gruesos y cuya finalidad es proteger los elementos mecánicos posteriores (bombas, agitadores, difusores...). Seguidamente se encuentra el tratamiento biológico (conocido como tratamiento secundario), donde se eliminan la mayoría de los contaminantes presentes en el agua. Finalmente, es posible encontrar unidades de postratamiento, afino o tratamiento terciario (ozonización, desinfección por luz ultravioleta, cloración...), cuyo objetivo es mejorar la calidad del agua obtenida en el tratamiento secundario, por ejemplo, mediante operaciones de desinfección para eliminar los microorganismos que pudieran escapar con el efluente.

Los lodos que puedan provenir con el agua, así como los que son generados en los tratamientos físicos, químicos y/o biológico, son sometidos a diferentes procesos para disminuir su volumen y su peligrosidad. Este conjunto de tratamientos se conoce como línea de fangos. El objetivo es poder destinarlos a usos agrícolas, generación energética o poder depositarlos en vertedero, cumpliendo en cada caso con la legislación correspondiente. Esta línea puede incluir etapas físicas (espesado, centrifugado), químicas (estabilización con cal...) o biológicas (digestión aerobia, anaerobia...).

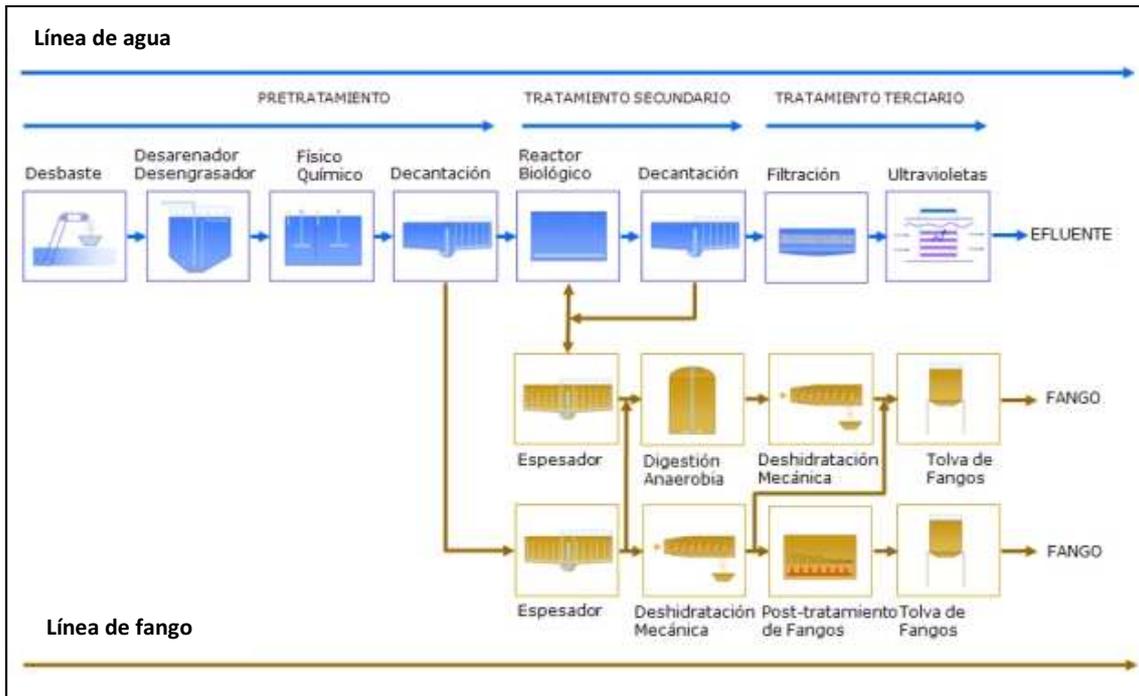


Figura 1: Esquema general de una EDAR.

### 2.1.3. Metabolismo de degradación biológica de la materia orgánica

El núcleo de un proceso de tratamiento de aguas residuales urbanas es el reactor biológico. El modo de operar la planta tiene un efecto decisivo en el desarrollo del conjunto de microorganismos que realizará la labor de eliminación de los contaminantes. Estos contaminantes actuarán como sustrato y nutrientes para el crecimiento de la biomasa, por lo que conocer sus características y funcionamiento metabólico es clave a la hora de establecer las condiciones óptimas que permitan la proliferación de los más indicados para la depuración.

Los sistemas biológicos de mayor implementación a nivel mundial para la degradación de la materia orgánica son sistemas basados en microorganismos dependientes del oxígeno (aerobios) como fuente aceptora de electrones. La figura 2 muestra un esquema simplificado de este metabolismo.

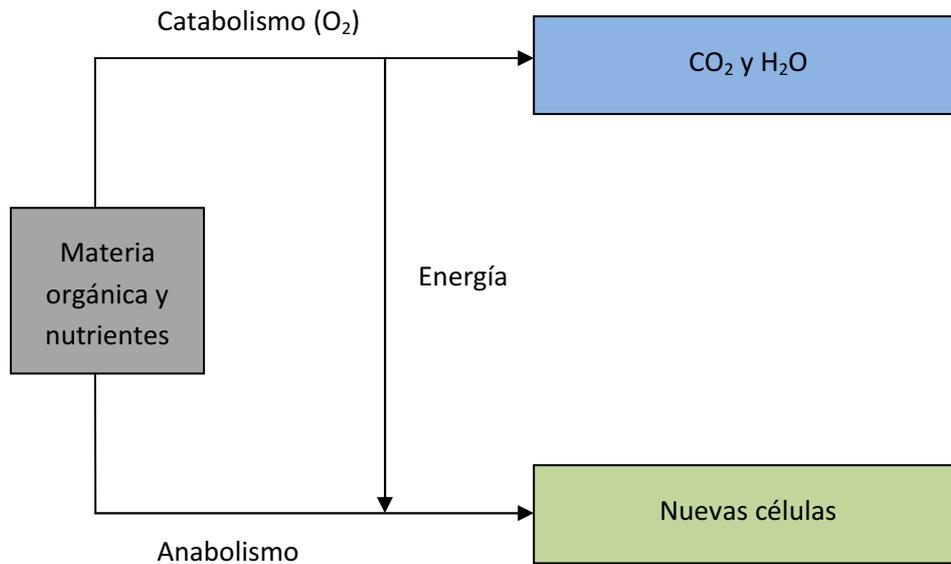


Figura 2: Esquema del metabolismo aerobio de degradación de materia orgánica.

En este sistema metabólico, el catabolismo oxida una fracción de la materia orgánica presente en el agua, conduciendo a la producción de CO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O y energía. Esta energía es aprovechada en el anabolismo para generar nuevos tejidos y células que incorporarán en su crecimiento los nutrientes presentes en el entorno. Bajo este esquema, la aireación es indispensable y ésta se lleva a cabo mediante métodos mecánicos que suponen entre un 54 y un 97% del consumo energético total de una planta de depuración (Lester *et al.* 2009). Además, se generan grandes cantidades de fango, que deben ser adecuadamente tratadas y gestionadas.

La figura 3 muestra un esquema del metabolismo anaerobio. En este esquema metabólico, el aceptor de electrones es una molécula orgánica, por ejemplo el piruvato. El producto del catabolismo anaerobio es más heterogéneo que en el caso del catabolismo aerobio, puesto que la oxidación no es total y en función del grado que ésta alcance se darán diferentes productos y subproductos. También hay que decir que la cantidad de energía obtenida en estas oxidaciones incompletas es menor que en el caso del catabolismo aerobio, por lo que el anabolismo dispone de menor potencial para generar nuevas células.

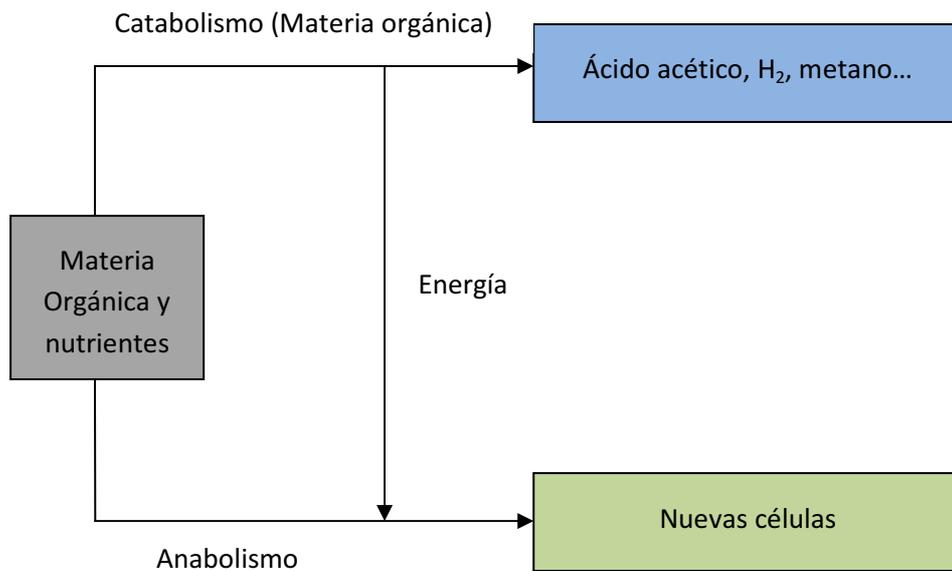


Figura 3: Esquema del metabolismo anaerobio de degradación de materia orgánica.

Frente a los sistemas convencionales aerobios, los sistemas anaerobios presentan una serie de características que suponen una ventaja. Por una parte, dado que se trata de una biomasa que se desarrolla en ambientes con ausencia de oxígeno, no es necesario establecer un sistema de aireación, con el ahorro energético que esto representa. Además, la propia naturaleza de los microorganismos anaerobios conlleva una menor producción de fangos, debido a su bajo rendimiento de crecimiento. Por último, uno de los productos de su metabolismo es el metano, el cual puede ser aprovechado como combustible para la obtención de energía. Por todo ello, la huella ecológica de estos procesos es menor que la de los procesos aerobios de fangos activados convencionales.

Por el contrario, los procesos anaerobios de degradación de la materia orgánica presentan algunos inconvenientes, como las bajas velocidades de crecimiento de los microorganismos a temperatura ambiente, problemas de sedimentación de los fangos producidos, o los bajos rangos de tolerancia a variaciones de pH o a sustancias inhibitoras.

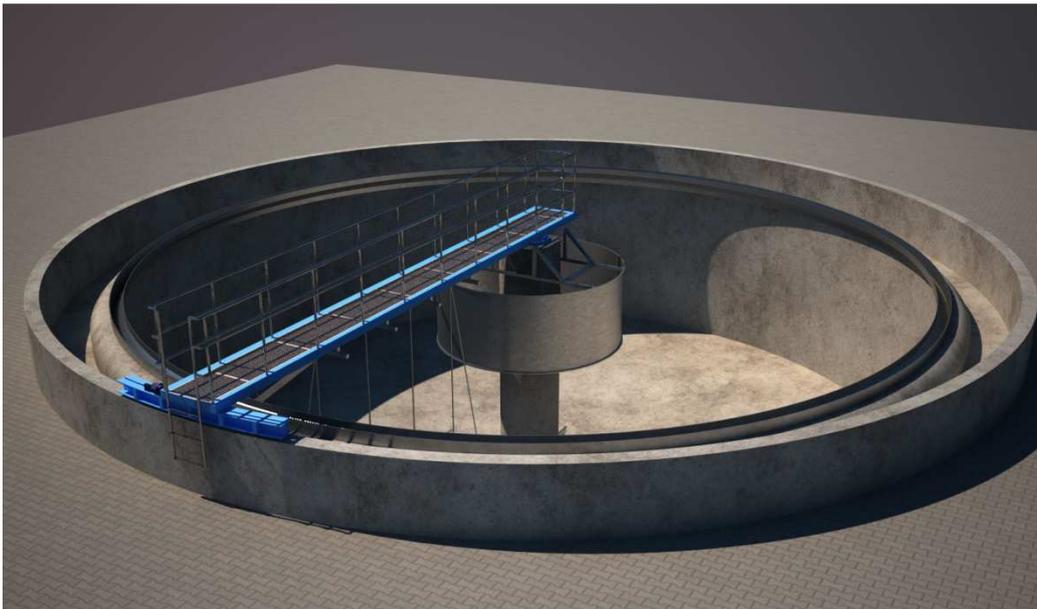
Para solucionar los problemas derivados de la baja velocidad de crecimiento celular y de los problemas de separación mediante métodos de sedimentación, se estableció la posibilidad de combinar la etapa del reactor biológico anaerobio con una posterior de separación mediante membranas. La membrana permite retener toda la biomasa en el sistema, cosa que no ocurre con los decantadores tradicionales, por lo que se alcanzan altos tiempos de retención celular (TRC) sin aumentar el volumen del reactor, gracias al desacople entre tiempo de retención hidráulico (TRH) y el TRC. Además, al conseguir incrementar el TRC a niveles mayores que con los sistemas convencionales, es posible aumentar la concentración de biocatalizadores presentes en el reactor. Esto permite alcanzar capacidades volumétricas de tratamiento altas para una gran variedad de aguas residuales, lo cual resulta ventajoso en un

sistema de tratamiento cuyo afluente puede presentar una gran variación temporal en su calidad (Jeison and Van Lier, 2006). A esta tecnología se la conoce como biorreactores de membrana sumergidas o SANMBR (*Submerged anaerobic membrane bio-reactor*) en sus siglas en inglés.

## 2.2. Tecnología de separación con membranas

### 2.2.1. Clasificación de los procesos de membrana

Uno de los procesos fundamentales en los sistemas de depuración de aguas residuales consiste en la separación de la biomasa del agua que va a ser vertida. Tradicionalmente este proceso se lleva a cabo en decantadores que hacen uso de la gravedad para que los agregados de microorganismos generados en el reactor biológico sedimenten y el agua clarificada rebose por el borde superior del depósito. En las estaciones de depuración convencionales, este proceso se lleva a cabo en los decantadores secundarios, como el mostrado en la figura 4.



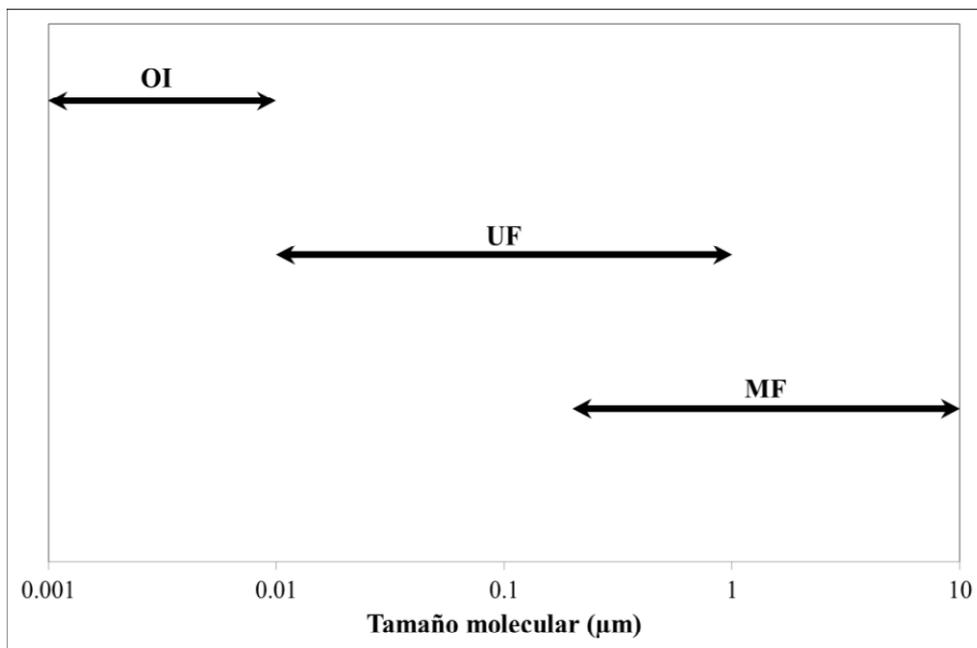
**Figura 4: Imagen de un decantador secundario**

Los sistemas de decantación por gravedad necesitan que el grueso de la biomasa desarrollada genere agregados (flóculos) que faciliten su sedimentación. Además, son sensibles a problemas de operación que favorezcan la desnitrificación, proceso por el cual el nitrato pasa a nitrógeno gaseoso, cuyas burbujas provocan que los flóculos floten y salgan de la planta junto al agua vertida. También son sensibles a la aparición de bacterias filamentosas, que dificultan la sedimentación, o a microorganismos generadores de espumas, responsables del fenómeno denominado *bulking*.

Estos problemas desaparecen con la instalación de un sistema de separación basado en membranas. Las membranas son barreras selectivas que limitan el transporte en una determinada dirección de algunas de las sustancias y organismos presentes en el medio. Su uso estuvo mucho tiempo condicionado por las limitaciones que suponían su coste, eficiencia y selectividad. Sin embargo, los avances tecnológicos y de materiales de los últimos años han permitido su abaratamiento y las convierten en una tecnología susceptible de ser utilizada en el ámbito del tratamiento de aguas residuales. Dentro de este campo, la tecnología de membranas se viene usando en las siguientes aplicaciones:

- ✓ Sistema de separación de sólidos en el tratamiento secundario de aguas residuales, asumiendo funciones de sedimentador secundario.
- ✓ Tratamiento terciario de aguas residuales, asumiendo las funciones de eliminación de turbidez, restos de sólidos suspendidos, parásitos y la mayoría de las bacterias presentes en el efluente proveniente del decantador secundario.
- ✓ Tratamiento de los lixiviados de los vertederos de residuos sólidos urbanos.

El diámetro de poro de la membrana permite retener las moléculas o partículas con un tamaño superior a él y supone además uno de los criterios para diferenciar los diferentes tipos de procesos que tienen como fuerza impulsora la presión: microfiltración (MF), ultrafiltración (UF) u ósmosis inversa (OI). La figura 5 muestra los rangos típicos de operación de estas tecnologías de separación.



**Figura 5: Intervalos de aplicación estándar de los procesos de filtración por membranas.**

Menores diámetros de poro suponen efluentes más clarificados, pero necesitan mayores gradientes de presión, lo cual se traduce en un mayor gasto energético, tal y como esquematiza la figura 6.

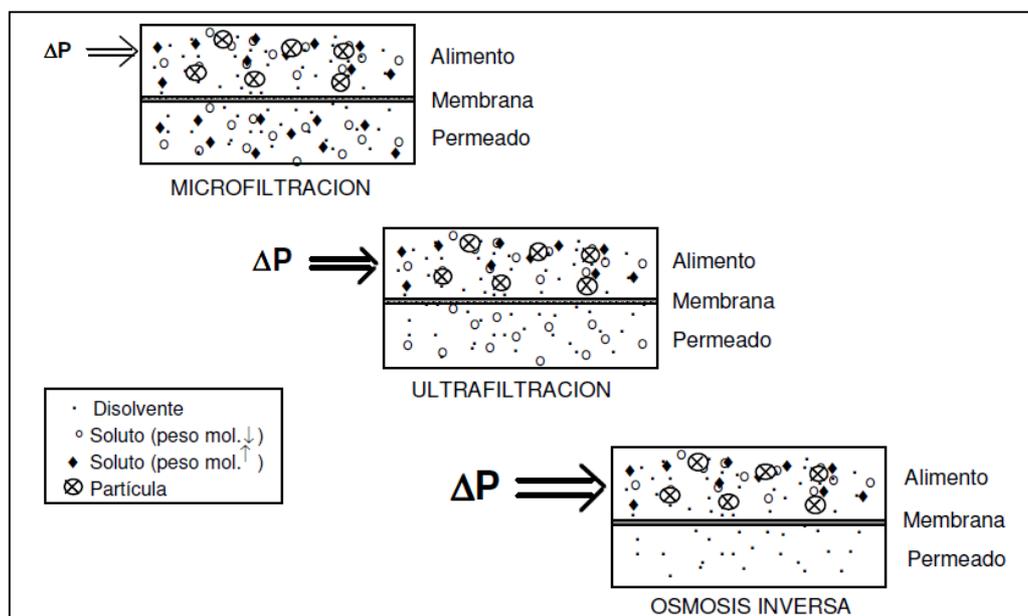


Figura 6: Procesos controlados por el gradiente de presión.

Los parámetros de control en un proceso de separación física por membrana más importantes son la presión transmembrana (PTM) requerida para realizar la separación y el flujo de permeado o flujo transmembrana (J) que proporciona cada PTM. Sus valores vendrán condicionados a su vez por diversos factores operacionales, tales como: la concentración de sólidos totales del licor mezcla (STLM); las relaciones de tiempos, frecuencias de aplicación y condiciones de flujo establecidos para las diferentes etapas de funcionamiento de las membranas (filtración, relajación, contralavado...); la frecuencia de etapas de limpieza aplicadas sobre las membranas; o el caudal de gas insuflado al tanque de membranas (generalmente medido como demanda específica de gas por área de membrana, DEG) para minimizar el ensuciamiento sobre la superficie.

Por último, en la tabla 2 se muestra un resumen de las características y usos de los diferentes procesos de membrana.

MF	UF	OI
Separación de partículas (bacterias, hongos, coloides)	Separación de macromoléculas (MF + proteínas, virus)	Separación de solutos de bajo peso molecular e iones (UF + sales, glucosa, lactosa)
Tamaño de paso nominal: 0.2 – 10 $\mu\text{m}$	Tamaño de paso nominal: 0.01 – 1 $\mu\text{m}$	Tamaño de paso nominal: 0.001 – 0.01 $\mu\text{m}$
Presión osmótica despreciable	Presión osmótica despreciable	Presión osmótica elevada (de 5 a 25 bar)
Presión aplicada baja ( $\Delta P < 2$ bar)	Presión aplicada baja ( $\Delta P < 10$ bar)	Presión aplicada elevada ( $\Delta P$ de 10 a 70 bar)
Estructura de membrana: simétrica	Estructura de membrana: asimétrica	Estructura de membrana: asimétrica
Espesor efectivo membrana: 10 – 150 $\mu\text{m}$	Espesor efectivo membrana: 0.1 – 1 $\mu\text{m}$	Espesor efectivo membrana: 0.1 – 1 $\mu\text{m}$
Separación basada en el tamaño de partícula	Separación basada en el tamaño de partícula	Separación basada en diferencias de solubilidad y difusividad

Tabla 2: Comparación entre los diferentes tipos de membranas.

### 2.2.2. Mecanismos de filtración

PTM se define como el gradiente de presión existente entre la superficie externa e interna de la membrana. Se trata de la fuerza impulsora que permite obtener el flujo de permeado a través de la membrana. Su cálculo depende del tipo de mecanismo de filtración aplicado, existiendo dos tipos básicos: la filtración terminal o directa y la filtración tangencial.

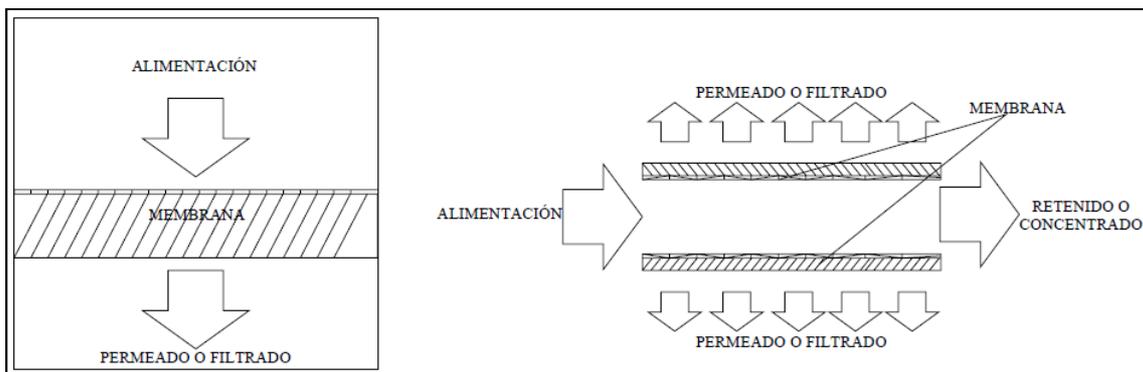
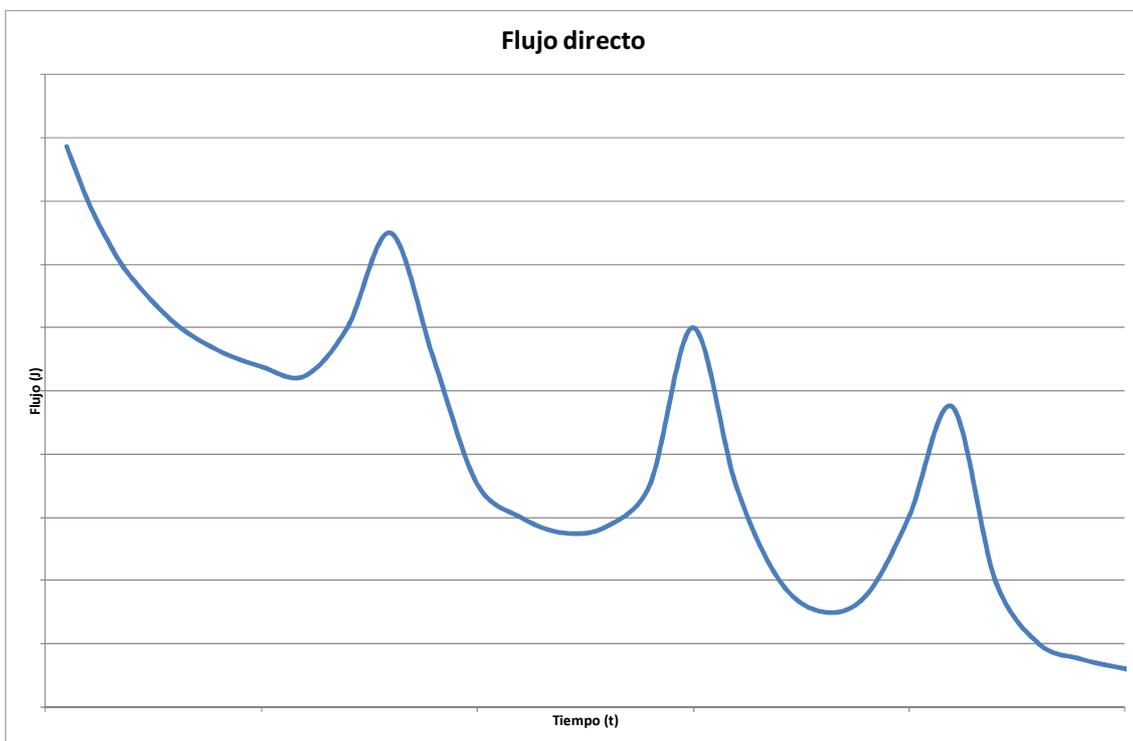


Figura 7: Diagrama esquematizado de los mecanismos básicos de filtración.

En el primer caso (filtración directa, imagen de la izquierda), el flujo de la solución es perpendicular a la membrana, por lo que como resultado, la concentración de soluto crece por igual en las proximidades a toda la superficie. Este mecanismo de filtración implica que la resistencia al flujo crecerá a medida que la operación se lleve a cabo, debido a la formación de

una torta de sólidos de espesor creciente sobre la superficie de la membrana. Por ello, en una operación de filtración a PTM constante se observará una disminución progresiva en el flujo de permeado, mientras que si se trata de una operación a flujo constante, será necesario incrementar la PTM a medida que avance el proceso. Una vez que la torta genere una resistencia al flujo demasiado alta, será necesario interrumpir la filtración para poner en marcha una limpieza mecánica de la membrana que elimine los sólidos depositados sobre esta. En cada limpieza se recuperará parcialmente la permeabilidad al desprenderse el componente reversible de ensuciamiento, mientras que el componente irreversible provocará que en cada ciclo de filtración se pierda parcialmente la capacidad filtrante del ciclo anterior, tal y como muestra la figura 8.



**Figura 8: Evolución de un proceso de filtración directo a PTM constante.**

En el caso de la filtración tangencial, el flujo de la solución es tangencial a la membrana, por lo que el propio movimiento del fluido impide que se la concentración de soluto aumente de manera homogénea en toda la superficie. En este caso, la concentración aumenta a medida que el fluido recorre la longitud de la membrana. Además, el propio flujo genera unos esfuerzos cortantes sobre la torta que favorece su desprendimiento. Es por esto que, en teoría, en la filtración tangencial se alcanza un estado estacionario cuando los esfuerzos cortantes compensan las fuerzas que tienden a mantener unida la torta a la membrana. La figura 9 muestra una operación de filtración de este tipo a PTM constante.

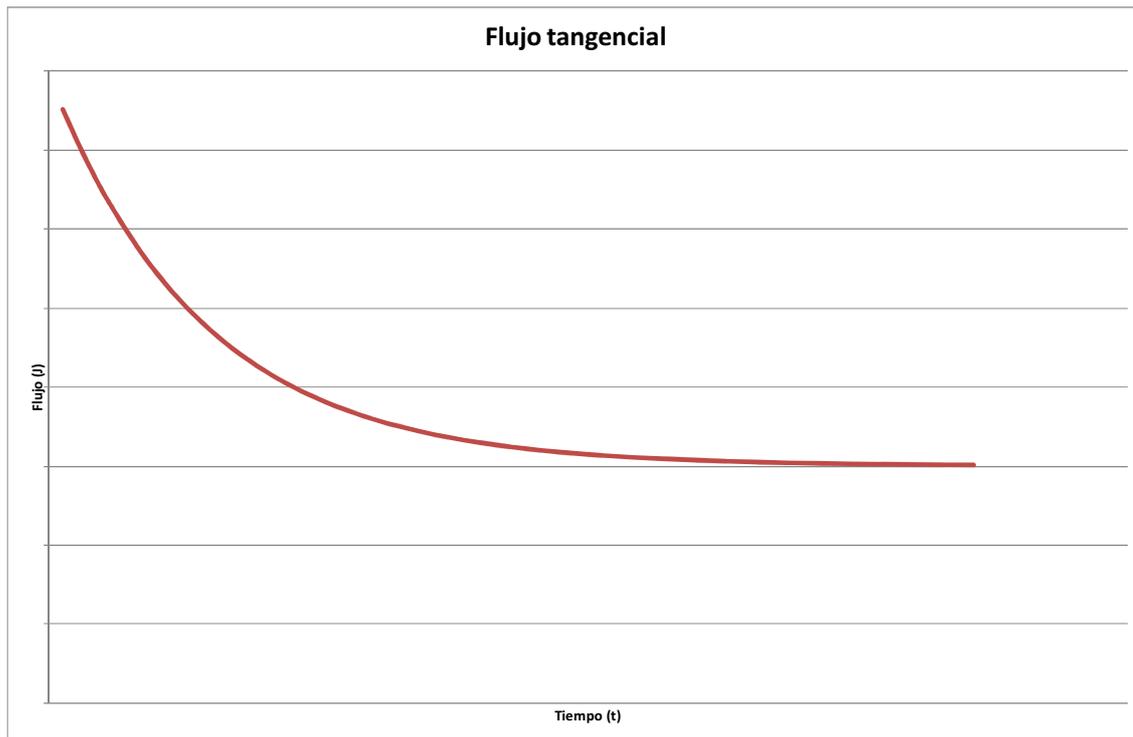


Figura 9: Evolución teórica del flujo del permeado durante una filtración tangencial a PTM constante.

Sin embargo, en la práctica sólo es posible alcanzar estados pseudo-estacionarios debido a que con el tiempo la torta tiende a consolidarse, conformando un bloque más compacto que genera resistencias adicionales al flujo (ensuciamiento irreversible y/o irrecuperable).

### 2.2.3. Tipos de membranas

Las membranas comerciales pueden clasificarse en dos grandes grupos en función del materia del que estén constituidas: poliméricas (orgánicas) e inorgánicas.

#### 2.2.3.1. Membranas poliméricas

Inicialmente las membranas de aplicación industrial se construyeron con polímeros basados en la celulosa. Posteriormente surgieron nuevas membranas orgánicas basadas en otros polímeros, tales como poliamidas o poliacrilonitrilo.

Este tipo de membranas presentan elevadas permeabilidades, pero resistencias muy bajas a la oxidación y a otros agentes químicos y microbiológicos, además de presentar dificultades en su limpieza. En función de su estructura, estas membranas se dividen en membranas simétricas, asimétricas y de intercambio iónico.

### Membranas simétricas

Las membranas simétricas (microfiltración) se clasifican como no porosas o microporosas. Las no porosas son membranas compactas que tienen una utilidad limitada. Su selectividad puede llegar a ser muy alta en función del polímero que se utilice para su fabricación, pero el caudal de permeado es bajo incluso a altas presiones. Esto es debido a que no es posible fabricar una película densa de polímero que proporcione una alta selectividad sin que aumente la resistencia al flujo. Las microporosas consisten en una matriz sólida polimérica con poros bien definidos. La separación de especies se efectúa por tamizado de los poros en relación al tamaño de partícula. Funcionan como filtros convencionales, de forma que las sustancias de tamaño superior al tamaño de poro de la membrana se van acumulando sobre la superficie y van cerrando los poros progresivamente. Por lo tanto, su tiempo de vida es limitado.

### Membranas asimétricas

Las membranas asimétricas (ultrafiltración) consisten en una película superficial, densa y muy delgada, y en una parte interior porosa de mucho mayor espesor. Así se consigue que la capa externa, de un espesor inferior a aproximadamente 1 micra, actúe como capa activa de separación y que la parte interior, de un grosor de 150-300 micras, actúe como soporte. Este tipo de estructura funciona como un filtro selectivo, mientras que la parte porosa o soporte, con una resistencia hidráulica despreciable, aporta exclusivamente resistencia mecánica al conjunto. De esta manera, estas membranas son capaces de combinar excelentes características selectivas con altas permeabilidades. El espesor de la capa activa es crítico. En principio, ha de ser tan delgado como sea posible, pero asegurando que no se produzcan perforaciones en la superficie. Dependiendo de los polímeros que constituyan la capa activa y el soporte, estas membranas se clasifican de forma general en asimétricas integrales y asimétricas compuestas.

Las membranas asimétricas integrales se preparan en una sola etapa a partir de un mismo material. La película semipermeable es muy fina y reposa sobre una capa soporte muy porosa y que confiere a la membrana una mayor resistencia mecánica. Son difíciles de preparar por la facilidad con que aparecen defectos en la superficie, como poros irregulares.

Las membranas asimétricas compuestas presentan una capa polimérica adicional que se deposita como un film más o menos uniforme sobre la cara activa de la membrana. De esta forma, es esta nueva capa, delgada y esencialmente homogénea, la que cumple las funciones de capa activa con capacidad máxima de separación. La estructura asimétrica actúa exclusivamente como matriz soporte de la misma.

### Membranas de intercambio iónico

Las membranas de intercambio iónico corresponden al grupo de membranas semipermeables. En esencia son sistemas cambiadores de iones en forma de film o película. Se utilizan como cambiadores de cationes cuando las cargas fijadas a la membrana poliméricas son negativas y funcionan como cambiadores de aniones cuando son positivas las cargas de la matriz polimérica. Estas membranas pueden ser de estructura simétrica o asimétrica, y homogénea o microporosa. Su selectividad se basa en que los iones con carga del mismo signo que las cargas de la membrana (co-iones), son rechazados por repulsión electrostática, mientras que los iones de signo contrario (contra-iones), son atrapados por la membrana.

#### *2.2.3.2. Membranas inorgánicas*

Las membranas inorgánicas más habituales se denominan también membranas cerámicas, de óxidos metálicos o simplemente metálicas. Destacan las membranas de alúmina ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ), las de óxido de zirconio ( $\text{ZrO}_2$ ) o titanio ( $\text{TiO}_2$ ), las de fibra de vidrio y las de carbón microporoso. Existen también membranas metálicas, pero sus aplicaciones son muy específicas y no están relacionadas con la tecnología de reactores de membrana para el tratamiento de aguas residuales.

Son más resistentes física y químicamente que las orgánicas y, al ser inertes, no varían sus propiedades con el tiempo. Tienen una resistencia elevada en amplios intervalos de pH, temperatura y presión, tienen menos tendencia al ensuciamiento y son más fáciles de limpiar que las membranas orgánicas. Como contrapartida son más caras. Generalmente suelen ser membranas asimétricas compuestas y pueden adoptar las diversas configuraciones modulares.

#### **2.2.4. Módulos de membrana**

Para su utilización a nivel industrial, las membranas se ensamblan en unos dispositivos conocidos como módulos de membrana, que pueden tener diferentes formas en función de la membrana a utilizar y del tipo de aplicación. Las configuraciones más habituales en orden descendente de la relación superficie/volumen son:

- Módulos tubulares
- Módulos de arrollamiento en espiral
- Módulos de fibra hueca
- Módulos de placa plana

#### 2.2.4.1. Módulos tubulares

Sirven para ensamblar membranas en forma de filamentos o tubos perforados. El alimento puede circular a través de la carcasa, extrayéndose el permeado desde el interior de la membrana o viceversa. Presentan un ensamblado sencillo, con carcasas de PVC o acero inoxidable. Su principal inconveniente es que presentan una baja relación superficie/volumen.

#### 2.2.4.2. Módulos de arrollamiento en espiral

La figura 10 muestra un esquema de la configuración de módulos de arrollamiento en espiral. Se trata de una serie de membranas planas separadas entre sí por capas de tejidos de distinta naturaleza que funcionan como transportadores y generadores de turbulencia de las disoluciones de alimentación y permeado.

Para su fabricación se parte de dos láminas de membrana situadas paralelamente con sus caras activas hacia el exterior y separadas por una malla. Se pegan por tres de los cuatro lados y se fijan por el lado abierto alrededor de un tubo hueco poroso. Finalmente todo el sistema queda protegido por una carcasa cilíndrica. El alimento fluye axialmente, mientras que el permeado fluye radialmente hacia el tubo central.

Es una de las configuraciones más económicas en lo que a consumo energético se refiere y alcanza altas relaciones superficie/volumen.

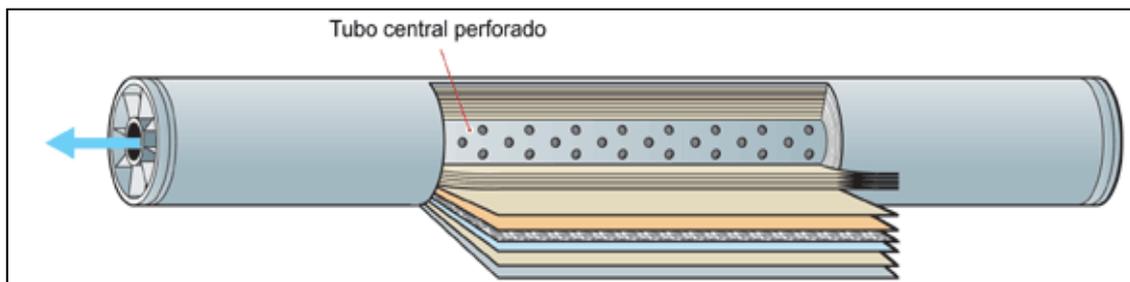


Figura 10: Esquema de un módulo de membrana de arrollamiento en espiral.

#### 2.2.4.3. Módulos de fibra hueca

La figura 11 muestra un ejemplo de módulo de membranas de fibra hueca. En esta configuración, las membranas se disponen en forma de haces o paquetes constituidos por un número variable de fibras, que oscila entre algunas decenas o varios millares, dependiendo de su diámetro y del tamaño del cartucho que las contiene. Los cartuchos se sellan por sus extremos donde se enlazan las fibras. Son de fácil accesibilidad, tanto para la sustitución como para la limpieza. Presenta una alta relación superficie/volumen y es la utilizada en la planta piloto de este trabajo.



Figura 11: Módulo de membrana de fibra hueca.

#### 2.2.4.4. Módulos de placa plana

Consisten en una serie de membranas dispuestas en capas horizontales y separadas por unos espaciadores permeables que actúan como canales que dirigen el flujo. La relación superficie/volumen depende de la eficacia del material que actúa como espaciador. El conjunto de placas y marcos que constituye el módulo puede disponerse en serie o en paralelo, lo cual permite diseños con superficies de filtrado elevadas. Tienen la ventaja de ser compactos y presentar la mayor la relación superficie/volumen. Son de fácil accesibilidad tanto para la sustitución como para la limpieza de cualquier membrana.

#### 2.2.5. Ensuciamiento (*fouling*)

El ensuciamiento o *fouling* es un problema general asociado a todos los procesos de separación con membranas. Se debe al taponamiento o recubrimiento de la membrana con sustancias o partículas que hay en el lado del alimento. Este fenómeno tiene como consecuencia una reducción de la permeabilidad, lo cual supone una disminución del flujo a través de la membrana o un aumento de la presión transmembrana necesaria para mantener un determinado flujo. En ambos casos, disminuye el rendimiento del proceso al incrementarse los costes de operación asociados, por ejemplo, al bombeo.

En función de su origen, el ensuciamiento puede dividirse en:

- Inorgánico: se produce al precipitar compuesto como  $\text{CaCO}_3$ ,  $\text{CaSO}_4$ ,  $\text{MgCO}_3$ , sílice... Suele combatirse controlando el pH de la solución o mediante sustancias que formen complejos con el catión.

- Particulado: las partículas presentes en el alimento penetran en la membrana colmatando los poros o forman una película sobre la membrana que añade una resistencia adicional al flujo.
- Biológico: sobre determinadas superficies y bajo ciertas condiciones, puede desarrollarse un biofilm sobre la membrana que actuaría como una resistencia adicional al flujo.

Otra manera de clasificarlo, según su naturaleza, sería:

- ✓ Reversible: se trata del ensuciamiento que se produce durante una etapa de filtración y que puede ser eliminado en una etapa posterior de limpieza mecánica (relajación, contralavado...).
- ✓ Irreversible: es el ensuciamiento que no puede eliminarse mediante limpieza mecánica. La manera de eliminarlo es interrumpir la operación y someter a la membrana a un lavado químico.
- ✓ Permanente o irrecuperable: el ensuciamiento es permanente cuando la membrana no recupera sus condiciones ni siquiera al ser sometida a un lavado químico.

Dada la naturaleza de un sistema de fangos activados, cualquiera de estos tipos de ensuciamiento puede producirse, incluso todos a la vez.

La bibliografía establece que en los reactores de membrana destinados a tratamiento de aguas el origen del *fouling* está principalmente causado por la secreción por parte de la biomasa de sustancias poliméricas extracelulares (EPS), productos solubles microbiológicos (SMP) y otras sustancias resultantes de la lisis celular (Pollice *et al.* 2004). En cualquier caso, parece que la materia coloidal presente juega un papel importante en los mecanismos relacionados con el ensuciamiento, ya que estas partículas son transportadas más lentamente de nuevo al seno de licor mezcla que otra materia particulada, por lo que tiende a acumularse en la superficie de la membrana durante los ciclos de operación (Judd, 2011; 142; Rosenberger *et al.* (2006)).

Es por todo esto que las estrategias de operación de estos sistemas deben tener en consideración la minimización de los efectos del *fouling*, con el fin de resultar lo más rentables posibles.

#### 2.2.5.1. Control del ensuciamiento

La viabilidad de los procesos de membrana vendrán determinados principalmente por el control del ensuciamiento. Son varias las estrategias seguidas para minimizar su incidencia, así como para optimizar la filtración minimizando los costes de inversión y operación.

Una de las estrategias de control que persigue minimizar el ensuciamiento consiste en operar sobre el caudal de gas recirculado a los tanques de membranas, ya que la turbulencia ejercida por este disminuye el depósito de sólidos sobre la superficie de la membrana durante la etapa de filtración. Además, esta turbulencia ayuda a que la torta generada sea desprendida en las etapas de relajación. Otra estrategia de control consiste en operar la planta de manera que la concentración de sólidos totales en el tanque de membrana no sea excesivamente elevada, puesto que de este modo el ensuciamiento producido es menor. En ambos casos la estrategia de control seleccionada pretende minimizar el ensuciamiento producido estableciendo condiciones subcríticas de filtración. De esta manera se previene la formación de ensuciamiento irreversible e irrecuperable y se alarga la vida útil de la membrana, aumentando con ello la rentabilidad del proceso.

### **2.2.6. Flujo crítico**

Como se ha mencionado anteriormente, una de las estrategias planteadas para mejorar el funcionamiento de un sistema de membranas evitando los problemas asociados por el ensuciamiento de las mismas consiste en operar por debajo de las condiciones críticas de filtración, que vienen establecidas por lo que se denomina flujo crítico ( $J_c$ ).

De manera general, se establece que el flujo crítico es aquél por debajo del cual no se aprecia una disminución del flujo de permeado a lo largo del proceso de filtración, mientras que por encima de él, se produce ensuciamiento (Field *et al*, 1995). Partiendo de esta definición general, se definieron dos conceptos más concretos:

- Definición fuerte ( $J_{CF}$ ): el flujo crítico es aquel que marca la barrera por encima de la cual el flujo de permeado ya no es el mismo que el obtenido con agua limpia bajo las mismas condiciones.
- Definición débil ( $J_{CD}$ ): bajo este criterio, el flujo crítico es aquél por debajo del cual la presión transmembrana y el flujo no están linealmente relacionados.

La figura 12 muestra un esquema con las diferencias entre ambos flujos en función de la aplicación de la definición que se realice.

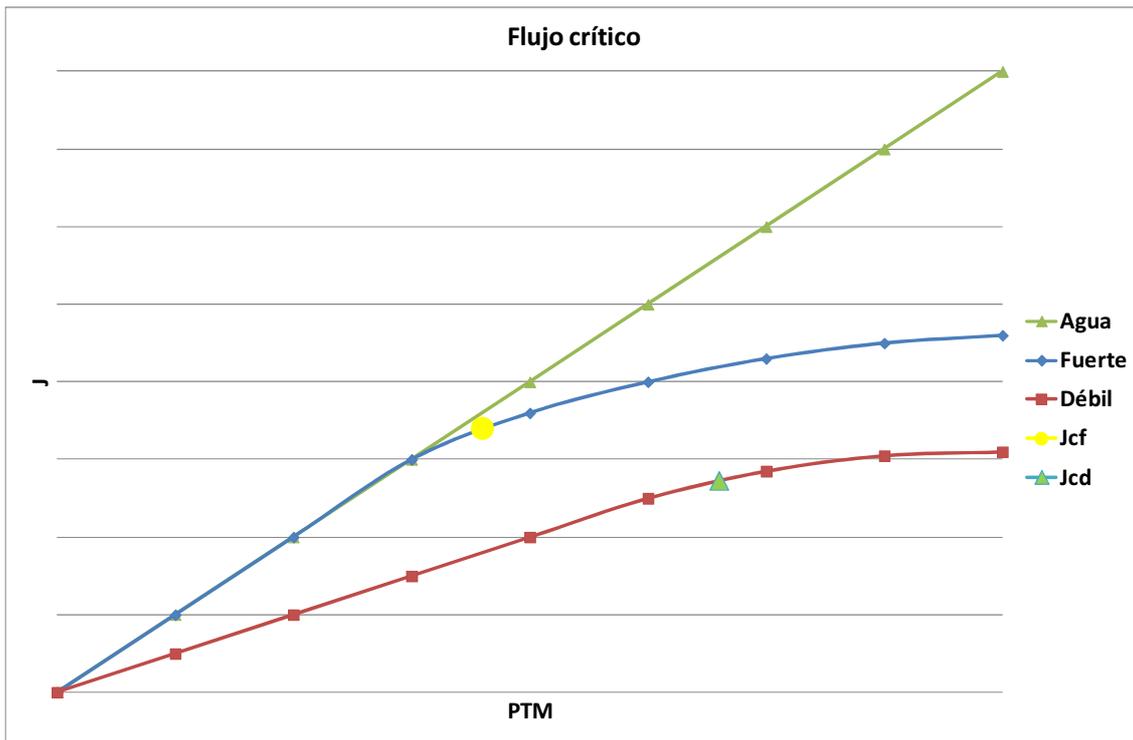


Figura 12: Diagrama de flujos críticos.

La serie verde corresponde al comportamiento de la membrana tratando agua limpia. A medida que se incrementa el flujo crece de igual manera la PTM. La serie azul establece el comportamiento que describe la definición fuerte del flujo crítico, por debajo del cual, el comportamiento es idéntico al del agua limpia, pero que una vez llegado a ese límite, comienza a desviarse. Por último, la serie roja muestra el comportamiento según la definición débil. Tal y como se ha definido, el resultado no tiene por qué ser semejante al del agua limpia, sino que una vez sobrepasado el flujo crítico, incrementos de la PTM no generan incrementos del flujo semejantes a los generados en condiciones subcríticas. Los incrementos del flujo una vez sobrepasado el flujo crítico, son cada vez menores, debido a la aparición del *fouling*. Es importante resaltar, tal y como se muestra en la figura 12, que en función de la definición aplicada, el flujo crítico presentará valores diferentes.

### 2.2.7. Método de flujo escalonado

En la bibliografía es posible encontrar diferentes métodos para establecer las condiciones críticas de filtración, siendo el conocido como “*Flux-step method*” (traducido en este trabajo como *método de flujo escalonado*) el más habitual (Le-Clech *et al.*, 2003; Giuglielmi *et al.*, 2007; van der Marel *et al.*, 2009; Robles *et al.*, 2012). Este método permite establecer el flujo crítico en un amplio rango de condiciones de operación, especialmente bajo diferentes concentraciones de sólidos suspendidos en el licor mezcla (STLM) y diferentes

caudales de gas insuflados al tanque de membranas. Estos dos parámetros han sido identificados como los que más afectan al flujo crítico.

El método original establece una serie de etapas de filtración consecutivas. Existen modificaciones del método original que intercalan etapas de contralavado o relajación entre las etapas de filtración con el fin de minimizar el efecto del ensuciamiento reversible entre escalones sucesivos. En cada etapa de filtración se incrementa el flujo de permeado en una cantidad prefijada con respecto a la etapa anterior, monitorizándose los datos de PTM a lo largo de cada uno de los escalones de flujo establecidos. Mientras la filtración se encuentre en condiciones subcríticas, la PTM y el flujo de permeado seguirán una relación lineal. Sin embargo, una vez superado el flujo crítico, el incremento de la PTM será cada vez mayor, hecho que indica que el ensuciamiento ha comenzado a producirse. Por tanto, en función de la definición de flujo crítico seleccionada, será posible determinar el valor de este para cada rango de condiciones de operación.

### **2.3. La tecnología SAnMBR (*Submerged anaerobic membrane bio-reactor*)**

El primer reactor biológico de membrana (MBR, del inglés *membrane bio-reactor*) destinado al tratamiento de aguas residuales fue construido a finales de década de los 60. Se trataba de una combinación de un proceso convencional de fangos activados en el que el módulo de membrana se encontraba fuera del reactor biológico (Judd, 2011; 4).

La adopción en España de esta tecnología fue más tardía que en otros países de su entorno, tales como Reino Unido, Alemania, Francia o Italia. Las primeras instalaciones constan de 2000. Sin embargo, el mercado se ha desarrollado más rápidamente que en los países mencionados (Judd, 2011; 43).

La figura 13 muestra las dos configuraciones más habituales en un MBR de membrana sumergida:

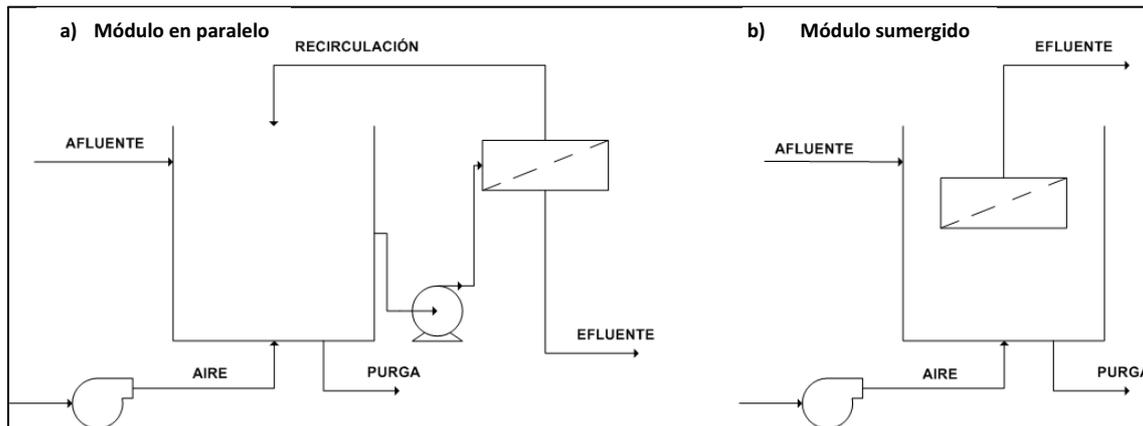


Figura 13: Configuraciones en un biorreactor de membrana: (a) módulo en paralelo y (b) módulo sumergido (Adaptado de Ferrer, J. et al. (2003).

La figura 13a muestra la configuración de un MBR cuando el tanque de membranas se dispone fuera del reactor. Con esta configuración, la etapa de separación genera dos corrientes: el permeado y el fango concentrado, que es recirculado de nuevo al reactor. Además, el mecanismo de filtración es tangencial (ver figura 7), por lo que se disminuyen los problemas asociados al ensuciamiento, ya que el propio movimiento del fluido favorece la eliminación de la torta que se deposita sobre la membrana. Además, el módulo de membrana externo facilita el proceso de limpieza y mantenimiento al no tener que vaciar el reactor para acceder a ellas. Como contrapartida, es necesario el bombeo del contenido del reactor hasta el tanque de membrana, lo cual supone un gasto energético adicional.

En el caso de la figura 13b, el módulo de membrana se encuentra directamente dentro del reactor. En este caso, el mecanismo de filtración es directo (ver figuras 7 y 8), lo cual implica mayores problemas de ensuciamiento. Para disminuirlos es habitual que haya una corriente de aire o gas que provoque la agitación y el movimiento de las membranas, con el fin de favorecer el desprendimiento de los sólidos que se vayan depositando sobre la membrana durante la filtración. Además, presenta la ventaja de no necesitar un bombeo de recirculación y que se trata de sistemas más compactos. Como inconveniente hay que remarcar que la limpieza de la membrana supone parar el reactor temporalmente para acceder a ella.

Al igual que en los sistemas convencionales de tratamiento biológico de aguas residuales, los MBR pueden ser aerobios o anaerobios. Una ventaja de estos sistemas de membrana es que permiten alcanzar calidades de agua en el efluente susceptible de ser reutilizada para diversos usos. En un país como España, cuyos recursos hídricos convencionales pueden sufrir una drástica reducción en los próximos años a causa del cambio climático, las aguas residuales, tras un adecuado tratamiento, pueden convertirse en una nueva fuente de recursos que ayude a mitigar el impacto de la creciente escasez. La legislación española, a través del Real Decreto 1620/2007, de 7 de diciembre, establece los usos permitidos para las aguas residuales tratadas, así como las exigencias en su calidad. Uno

de los condicionantes más repetidos en sus anexos, donde se establecen los criterios a cumplir, es el microbiológico. Estos anexos detallan los valores máximos admisibles de determinados tipos de microorganismos según los usos del agua. Dado que en un MBR es posible elegir el tamaño de poro del sistema de filtración, de tal manera que los microorganismos no puedan atravesarlo, la calidad microbiológica está perfectamente controlada y la totalidad del agua tratada podría ser reutilizada, siempre que cumpliera con el resto de parámetros, tales como concentraciones límite de materia orgánica y nutrientes.

Tal y como se mencionó anteriormente, los tratamientos anaerobios comparados con los tratamientos aerobios presentan las siguientes características (Judd, 2011; 93):

- ✓ Baja demanda energética debido a la ausencia de aireación.
- ✓ Baja velocidad de crecimiento de los microorganismos implicados en la degradación de la materia orgánica.
- ✓ Menor eliminación de DQO (generalmente entre un 60 y un 90%).
- ✓ No eliminan nutrientes (fósforo y nitrógeno).
- ✓ Mayor potencial en la generación de olores.
- ✓ Mayores plazos para la puesta en marcha (semanas o meses).
- ✓ Mayor alcalinidad.
- ✓ Menor producción de fangos.
- ✓ Generación de biogás.

La baja producción de fangos de los procesos anaerobios es una ventaja, puesto que implica un menor volumen de fangos a gestionar. Sin embargo, también supone una limitación a la hora del tratamiento de aguas residuales, puesto que puede implicar bajos rendimientos de eliminación de materia orgánica bajos. A esto hay que añadirle que la influencia de la temperatura en los tratamientos anaerobios es mayor que en los tratamientos aerobios, siendo necesarias temperaturas mayores para poder mantener tasas de actividad rentables.

La tecnología SAnMBR reúne los beneficios que proporciona la tecnología MBR con los beneficios de un sistema de tratamiento anaerobio. Este sistema permite retener la biomasa en el reactor, de manera que se desacopla el TRC y el TRH. Al permanecer la biomasa durante más tiempo dentro del sistema e impedir las membranas su salida con el efluente, los problemas derivados del bajo rendimiento en el crecimiento de las bacterias anaerobias a temperatura ambiente quedan solucionados, sin necesidad de incrementar el volumen de reacción necesario. Por tanto, es posible alcanzar rendimientos de eliminación de DQO satisfactorios mediante consumos energéticos teóricamente inferiores que en sistemas aerobios de tratamiento de aguas residuales debido a la ausencia de aireación. Además, se generan menores cantidades de fangos y se produce biogás, el cual puede ser utilizado como fuente de energía.

Sin embargo, trabajar con elevados TRC supone, para un mismo volumen de reactor, alcanzar concentraciones elevadas de sólidos en el licor mezcla, siendo esta una de las principales restricciones en la operación de cualquier tecnología basada en la separación por membranas. Cuanto mayor sea la concentración de sólidos totales en el licor mezcla, menor será la permeabilidad de la membrana ( $K$ ), factor que se traduce de forma directa en una disminución de la capacidad de tratamiento y por tanto de la eficiencia del proceso, así como en un aumento de los costes de operación y mantenimiento (Chang *et al.*, 2002). Por ello, con el objetivo de minimizar el ensuciamiento de las membranas, y así ampliar la vida útil de las mismas, es de vital importancia optimizar las variables de operación que afectan al proceso de filtración.

Las principales variables a optimizar en este tipo de procesos suelen ser: la frecuencia y duración de las etapas de limpieza física, tales como la relajación o el contralavado, la velocidad tangencial del licor mezcla sobre la superficie exterior de las membranas, y el caudal de recirculación de biogás para la agitación de las fibras. Además, tal como se mencionó anteriormente, cabe destacar que el ensuciamiento de las membranas puede reducirse significativamente trabajando bajo condiciones sub-críticas de filtración, es decir, con flujos transmembrana inferiores al denominado flujo crítico.

En la bibliografía es posible encontrar ejemplos de aplicación de la tecnología SAnMBR con resultados satisfactorios a escala de laboratorio para diferentes tipos de aguas residuales (Aiyuk and Verstraete, 2004; Jamal and Mahmoud, 2009; Martín *et al.*, 2010). Sin embargo, los resultados relativos al comportamiento de las membranas a escala laboratorio no son aplicables de forma directa a plantas reales, puesto que el tamaño de la membrana tiene gran influencia en la hidrodinámica del sistema (Pollice *et al.*, 2004), como se verá más adelante.



### **3. OBJETIVOS**



### **3. OBJETIVOS**

El objetivo principal de este Trabajo Fin de Máster consiste en estudiar la influencia que presentan diversos parámetros de operación en el comportamiento del proceso de filtración en un sistema SANMBR. La planta piloto de este estudio está dotada con membranas comerciales de ultrafiltración de fibra hueca y el agua residual empleada es un agua residual urbana, lo cual supone trabajar en unas condiciones extrapolables a la escala industrial.

Los objetivos específicos de este trabajo se detallan a continuación:

- ✓ Estudio de la influencia de la concentración de los sólidos suspendidos presentes en el reactor anaerobio sobre el flujo crítico.
- ✓ Estudio de la influencia del caudal de biogás suministrado al módulo de membrana sobre el flujo crítico.
- ✓ Estudio a largo plazo del comportamiento de la membrana a diferentes condiciones de operación.
- ✓ Validación del método de flujo escalonado para la estimación del componente de ensuciamiento irreversible e irrecuperable a largo plazo.

Para alcanzar dichos objetivo el Trabajo Fin de Máster se estructuró en las siguientes etapas:

- Revisión bibliográfica para conocer el estado de la técnica.
- Definición de los parámetros de operación que se consideran más significativos, así como su rango de estudio.
- Desarrollo de los experimentos de filtración para extraer los datos requeridos.
- Tratamiento de los datos.
- Obtención de conclusiones.



## **4. MATERIALES Y MÉTODOS**



## 4. MATERIALES Y MÉTODOS

### 4.1. Descripción de la planta piloto

La figura 14 muestra el esquema de la planta piloto en la que se realizaron los ensayos correspondientes al estudio del comportamiento de las membranas del que trata el presente trabajo.

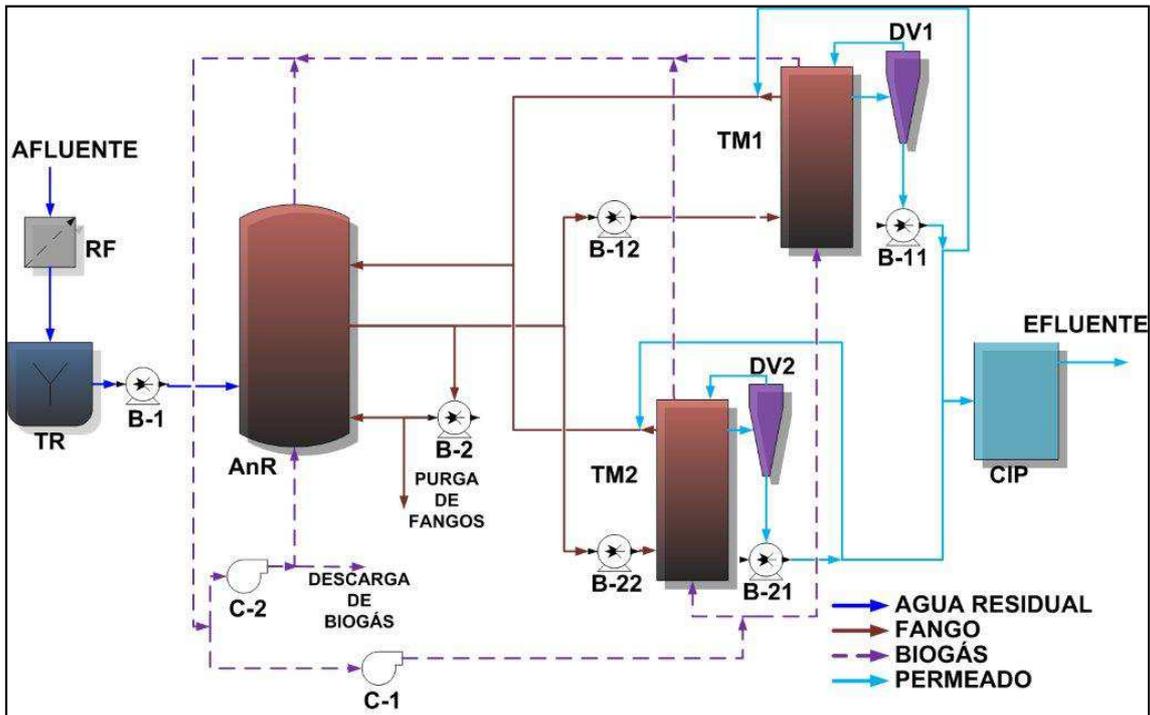


Figura 14: Diagrama de flujo de la planta piloto (Adaptado de Robles, A. (2010)).

La planta se caracteriza por la combinación de un sistema de tratamiento anaerobio de aguas residuales urbanas seguido de una etapa física de separación, consistente en dos módulos de membranas de ultrafiltración de fibra hueca sumergida.

La descripción de los elementos que componen la planta se detalla a continuación:

- Rotofiltro (RF): es el elemento encargado de llevar a cabo el pretratamiento del agua que entra en la planta (ver figura 15). Elimina los elementos y partículas más gruesas con el fin de proteger los elementos posteriores. Tiene una luz de paso de 0,5 mm.



**Figura 15: Rotofiltro.**

- Tanque de regulación (TR): depósito de 300 litros cuyo objetivo es amortiguar las variaciones de las cargas a lo largo del día (ver figura 16). Incluye un sistema de agitación mecánica continua consistente en un agitador de paletas planas inclinadas.



**Figura 16: Tanque de regulación.**

- Reactor anaerobio (AnR): reactor estanco de 1300 litros en el que se deja un espacio de cabeza de 300 litros para recolección y almacenamiento de biogás (ver figura 17). Parte de este biogás es recirculado e inyectado en la base del reactor, con el fin de mantener su contenido agitado. Además, cuenta con un segundo sistema de recirculación, esta vez de fango, que también favorece la agitación y permite la purga de fango producido en exceso. Rodeando el reactor se encuentra una camisa calefactora que permite controlar la temperatura dentro del depósito.



**Figura 17: Reactor anaerobio.**

- Tanques de membrana: tras el reactor se encuentran dos tanques de membranas, denominados TM1 y TM2. Los ensayos realizados para este trabajo se llevaron a cabo en el TM2 (ver figura 18). Cada tanque tiene un volumen de 800 litros, 200 de ellos de espaciado de cabeza destinados a la recolección y el almacenamiento de biogás. Cada tanque incluye un módulo de membranas comercial de ultrafiltración, PURON, Koch Membarne Systems, de 0,05  $\mu\text{m}$  de diámetro de poro, que consta de 9 racimos de membranas de fibra hueca, cada una de ellas de 1,8 metros de longitud. El área total de filtración es de 30  $\text{m}^2$  por módulo. Para la mezcla, dentro de cada depósito se cuenta con un sistema de recirculación del biogás generado en el sistema. Con la introducción del gas por la base del tanque se busca minimizar la deposición de partículas sobre la superficie de las membranas, así como homogeneizar su contenido. Los tanques cuentan además con un sistema de separación de gases (desgasificadores DV1 y DV2) situados en la salida del permeado. El cambio de sección de estos desgasificadores permite la separación del biogás y el permeado, dado que parte del gas es arrastrado junto con la fase líquida durante las etapas de filtración. El biogás recuperado es así reintroducido al tanque de membranas en una de las etapas de operación.



**Figura 18: Tanque de membranas.**

- Tanque CIP (Clean-in-place); depósito de 200 litros de capacidad situado tras los tanques de membrana (ver figura 19). Este tanque almacena parte del permeado que se usará en las etapas de limpieza física de las membranas.



**Figura 19: Tanque CIP.**

- Sistema de distribución de gases: dos soplantes (C1 y C2) son las encargadas de distribuir el biogás generado (ver figura 20). Además una válvula de membrana permite la descarga al exterior del exceso de gas cuando se supera el umbral de presión establecido en los elementos de control.



Figura 20: Soplantes.

La planta es alimentada con el efluente del pretratamiento (consistente en desbaste, desarenado y desengrasado) de la EDAR del Carraixet (Alboraya, Valencia). La tabla 3 muestra los valores medios de los parámetros que caracterizan el agua. Cabe destacar la elevada variabilidad en los valores de estos parámetros, tal y como recoge la desviación estándar.

PARÁMETRO		AFLUENTE	
		Media	DS
$DQO_{total}$	( $mg \cdot L^{-1}$ )	584	267
AGV	( $mg \cdot L^{-1}$ )	8,5	6,5
$N-NH_4$	( $mgN-NH_4 \cdot L^{-1}$ )	31,8	8,9
$P-PO_4$	( $mgP-PO_4 \cdot L^{-1}$ )	3,9	1,6
$S-SO_4$	( $mgS-SO_4 \cdot L^{-1}$ )	335,9	70,0
SST	( $mg \cdot L^{-1}$ )	314	166
SSV	( $mg \cdot L^{-1}$ )	259	137
Alk	( $mgCaCO_3 \cdot L^{-1}$ )	325	60

Tabla 3: Caracterización del agua afluyente.

Tal y como muestra la figura 14, la bomba B1 impulsa el agua al interior del reactor anaerobio, una vez que pasa por el rotofiltro y el tanque de regulación. En el reactor se produce la degradación de la materia orgánica, con la consiguiente generación de biogás. Este biogás es utilizado por la soplante C2 para agitar la mezcla del tanque anaerobio. Además, esta recirculación de gas favorece la desabsorción de los gases presentes en el licor, favoreciendo por tanto el arrastre del  $CO_2$ ,  $CH_4$  y  $H_2$  generado. Debido a este proceso, la concentración de estos gases disueltos permanece en equilibrio con la fase gaseosa, por lo que se minimizan las

variaciones de pH asociadas, por ejemplo, a la desabsorción incontrolada de CO<sub>2</sub>. Como ya se ha mencionado anteriormente, los procesos anaerobios son muy sensibles a variaciones en las condiciones de operación, de modo que un control del pH del medio resulta completamente necesario.

Tras el paso por el reactor anaerobio, las bombas B12 y B22 son las encargadas de alimentar los tanques de membranas TM1 y TM2, respectivamente. El licor mezcla se alimenta continuamente a los tanques por su base y es recirculado nuevamente al reactor anaerobio por la parte superior. Debido al proceso de filtrado, se produce un incremento en la concentración de sólidos en el tanque de membrana respecto a la que hay en el reactor anaerobio.

Parte del biogás generado en el sistema es impulsado por la soplantes hacia los tanques de membrana. Como ya se ha comentado, este biogás tiene como objetivo mantener una agitación que homogenice la concentración de fango en el tanque y asegurar un determinado grado de turbulencia en el interior de los mismos. Esta turbulencia genera esfuerzos cortantes que permiten desprender parcialmente la torta de sólidos formada sobre la membrana durante el proceso de filtración. De esta manera, la resistencia al flujo producida por el ensuciamiento es menor que la que se produciría sin esta recirculación de gas.

Por otra parte, la turbulencia proporciona cierto grado de movimiento lateral a las membranas, el cual reduce el grado de formación de torta sobre la superficie de las mismas durante el periodo de filtración. Al mismo tiempo se favorece el desprendimiento de esa torta durante los periodos en los cuales el proceso de filtración se detiene. Por tanto, el caudal de biogás recirculado a los tanques de membrana se convierte en uno de los parámetros de operación de los que depende el flujo crítico, al actuar directamente sobre la velocidad de deposición de partículas sobre la superficie de la membrana.

## **4.2. Funcionamiento de los módulos de membrana**

Con el fin de obtener un proceso de filtración adecuado que minimice el ensuciamiento con un bajo consumo energético es necesario diseñar una correcta secuencia de operación de las membranas. En la planta piloto utilizada para el desarrollo de este trabajo se establecieron las siguientes etapas:

- **Filtración:** Durante esta etapa se aplica una ligera presión negativa sobre el lado interior de las fibras de la membrana. Este vacío actúa como fuerza impulsora que provoca el flujo de permeado a través de la membrana. A medida que transcurre esta etapa se produce un incremento paulatino de la PTM como consecuencia de la deposición de los sólidos sobre la superficie de la membrana. Además, parte del biogás presente en el tanque es arrastrado junto al permeado a causa de esta fuerza impulsora, ya sea disuelto o en forma de pequeñas burbujas. Por este motivo, el

permeado extraído pasa a través de un desgasificador que recupera parte del biogás y lo devuelve al sistema.

- **Relajación:** Esta etapa es una etapa estática, en la que las bombas permanecen paradas y no hay flujo transmembrana. Al no haber fuerza impulsora el flujo transmembrana se detiene. De esta manera se favorece la eliminación de parte de la torta depositada sobre la superficie de la membrana, gracias a la agitación provocada por el biogás reintroducido en el tanque.
- **Contralavado:** El objetivo fundamental de esta etapa es la eliminación del ensuciamiento reversible de la membrana que no puede llevarse a cabo durante la etapa de relajación. Esta etapa consiste en invertir el flujo de la etapa de filtración, de manera que una parte del permeado almacenado en el CIP se reintroduce en el tanque a través de la membrana. Dado que se trata de agua sin sólidos, no se produce ningún ensuciamiento en el lado interno de la membrana y la fuerza del flujo permite arrastrar y desprender el ensuciamiento que se ha ido acumulando durante la etapa de filtración. De esta manera es posible mantener la etapa de filtrado a PTM aceptables.
- **Desgasificación:** Durante cada etapa de filtración se extrae con el permeado parte del gas presente en el tanque procedente de la recirculación destinada a mantener la agitación. Parte de este biogás queda atrapado en la cabeza de la membrana, ya las fibras se encuentran cerradas por su parte superior. A medida que transcurren etapas de filtración sucesivas, el volumen interno de las fibras ocupado por el gas puede llegar a incrementarse considerablemente. Como consecuencia de esto se reduce el área total efectiva de filtración. La etapa de desgasificación consiste en una filtración puntual a un flujo más elevado que en la etapa de filtración. Aunque estas etapas suelen ser cortas, los elevados flujos alcanzados permiten arrastrar el gas acumulado en la cabeza de las fibras, siendo conducido hacia el desgasificador. Mediante esta etapa se pretende recuperar la totalidad del área de filtración disponible.
- **Ventilación:** Esta etapa reintroduce al tanque de membrana una fracción del permeado almacenado en el tanque CIP, haciéndola pasar a través del desgasificador y no por las membranas. Esta etapa se realiza con el objetivo de arrastrar el gas acumulado en la cabeza del desgasificador nuevamente hacia el interior del tanque de membranas. En términos de limpieza de las membranas, esta etapa actúa como una etapa de relajación
- **Limpieza manual:** Durante esta etapa las bombas permanecen paradas con el objetivo de realizar las operaciones de limpieza de las membranas cuando sea necesario.

### 4.3. Instrumentación, control y automatización de la planta piloto

#### 4.3.1. Instrumentación de la planta piloto

La planta dispone de un gran número de sensores *on-line* y elementos de automatización que permiten monitorizar las variables de operación más importantes, ejecutar operaciones de control y optimizar el proceso. También dispone de instrumentación *off-line*, con el fin de complementar la información y el control del proceso. La figura 21 muestra el diagrama de flujo incluyendo la instrumentación.

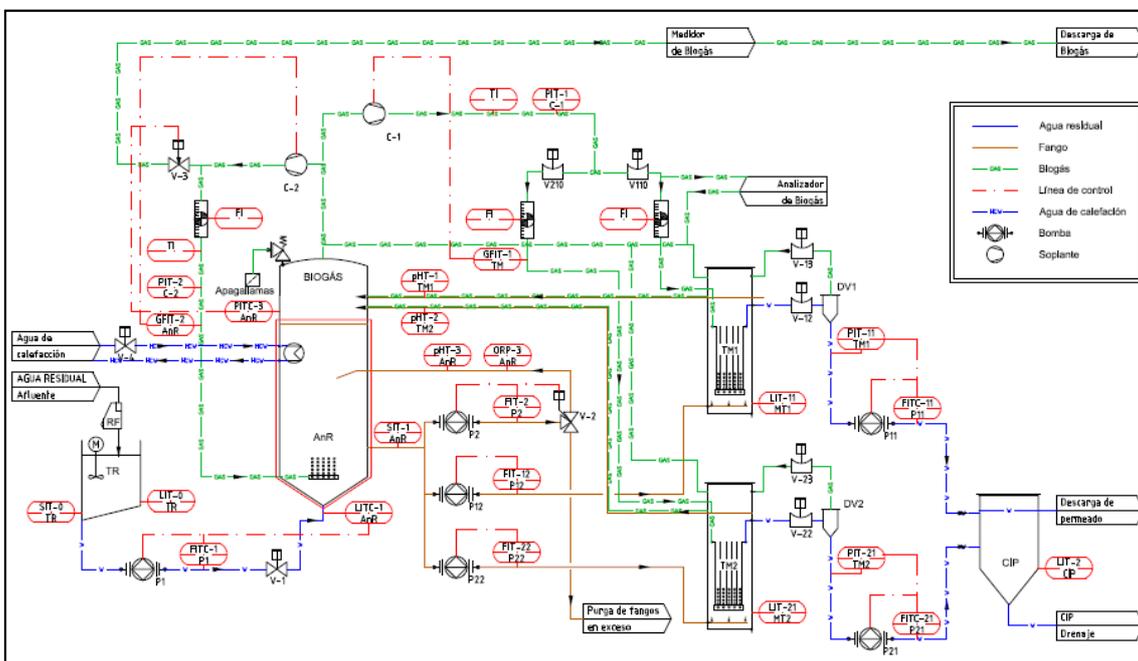


Figura 21: Diagrama de flujo e instrumentación implementada en la planta piloto.

Los elementos *on-line* implementados en el sistema son los siguientes:

- Tres sensores de pH-Temperatura. Son los denominados pH-T-1, pH-T-2 y pH-T-3 situados en los tanques de membrana TM1 y TM2 y en el reactor anaerobio respectivamente. Tal y como se comentó anteriormente, el control de estas dos variables resulta de gran importancia al operar un sistema biológico anaerobio de tratamiento de aguas.
- Un sensor de potencial redox (ORP-3), situado en el reactor anaerobio. Este sensor permite controlar que las condiciones de operación son reductoras, lo cual es una medida indirecta de la ausencia de oxígeno. La presencia de este gas detendría el proceso anaerobio.

- Seis caudalímetros para líquidos (FIT – *Flow Indicator Transmitter*), uno para cada una de las bombas de fluidos instaladas en la planta piloto (bomba de alimentación, bomba de recirculación interna/purga, bombas de alimentación a los tanques de membranas y bombas de permeado). Estos caudalímetros permiten no sólo monitorizar el funcionamiento de la planta, sino también desarrollar sistemas de control para poder llevar a cabo una correcta operación.
- Dos caudalímetros para gases (GFIT – *Gas Flow Indicator Transmitter*), uno para cada soplante instalada en la planta. Al igual que los caudalímetros para líquidos, estos caudalímetros de gas permiten no sólo monitorizar el funcionamiento de la planta, sino también desarrollar sistemas de control para poder llevar a cabo una correcta operación.
- Cinco sondas de nivel (LIT – *Level Indicator Transmitter*), situadas en cada uno de los tanques existentes en la planta piloto (TR, AnR, TM1, TM2 y CIP). Estos elementos, además de permitir una monitorización de los niveles de cada uno de los tanques, permiten establecer también condiciones de control y seguridad para el funcionamiento de la planta. El principio de medida de las sondas instaladas es por presión hidrostática.
- Dos sondas de presión para líquidos (PIT – *Pressure Indicator Transmitter*) para el control de la PTM, situadas en cada uno de los módulos de membrana (PIT-11 y PIT-21 para el TM1 y TM2, respectivamente). Estos elementos permiten monitorizar la presión ejercida sobre la superficie de la membrana. Gracias a estos sensores es posible establecer límites de seguridad operacional, fuera de los cuales el proceso de filtración debe detenerse. Estos sensores son los que permitirán establecer el flujo crítico a través del método de flujo escalonado.
- Tres sondas de presión para gases, PIT-1, PIT-2 y PIT-3, situados en la zona de impulsión de la soplante C41, en la zona de impulsión de la soplante C42 y en la cabeza del sistema, respectivamente.

En la tabla 4 pueden verse las características de la instrumentación *on-line* instalada en la planta piloto:

Equipo	Fabricante	Modelo	Principio de medición
Sonda pH-T	Endress+Hauser	Liquiline M pH-ORP CM42	Conductividad
Sonda redox-T	Endress+Hauser	Liquiline M pH-ORP CM42	Conductividad
Caudalímetro (fango y afluente)	Endress+Hauser	Proline Promag 50	Electromagnetismo
Caudalímetro (permeado)	Endress+Hauser	Proline Promag 50	Electromagnetismo
Caudalímetros de gas	Iberfluid	VORTEX 84F-U3QS1SSVNE-N	Electromagnetismo
Sondas de nivel	Endress+Hauser	Waterpilot FMX167	Presión hidrostática
Captore presión gases	Endress+Hauser	Cerabar M PMC45	Membrana cerámica (Ceraphire)
Captore presión líquidos	Endress+Hauser	Cerabar M PMC41	Membrana cerámica (Ceraphire)

Tabla 4: resumen de la instrumentación en línea instalada en la planta piloto.

Además de estos sensores, se ha instalado un analizador de gases *on-line* e *in-situ*. La función de este equipo es determinar la concentración de los principales componentes del biogás producido ( $\text{CO}_2$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{H}_2$  y  $\text{H}_2\text{S}$ ).

Tal y como se ha comentado anteriormente, también hay implementados algunos elementos de media *off-line*: dos sensores de temperatura para gases, tres flujómetros para gases y un contador de gases conectado a la conducción de salida de la válvula de descarga de biogás.

Además de las sondas de medida, la planta cuenta con una serie de actuadores automatizados: una válvulas regulables de membrana de gases, válvulas automáticas todo o nada, una válvula de tres vías y variadores de frecuencia para las bombas y soplantes.

#### 4.3.2. Control de la planta piloto

El resumen de los lazos de control implementados en la planta puede verse en la tabla 5. El control de la totalidad de las bombas y soplantes se realiza mediante la manipulación de la velocidad de giro del motor de cada uno de estos equipos. Esta manipulación se consigue a través de los variadores de frecuencia asociados a cada uno de sus motores. Se trata de controladores por retroalimentación PID que modifican la frecuencia de giro del motor para mantenerla en torno al valor de consigna.

Además de los controladores PID, se implementaron un conjunto de controles *on-off* destinados a la manipulación de determinadas variables de operación de la planta piloto. Estos controladores actúan sobre distintas válvulas instaladas en la planta piloto, modificando su posicionamiento.

Control	Algoritmo de control	variable controlada	Elemento controlado	Variable manipulada	Variable manipulada indirecta
1a	PID	Caudal B1	Bomba B1	Frecuencia de giro	
1b	PID	Nivel Reactor	Bomba B1	Frecuencia de giro	Caudal afluente
2	PID	Caudal B2	Bomba B2	Frecuencia de giro	
3	PID	Caudal B12	Bomba B12	Frecuencia de giro	
4	PID	Caudal B22	Bomba B22	Frecuencia de giro	
5a	PID	Caudal B11	Bomba B11	Frecuencia de giro	
5b	PID	Nivel Reactor	Bomba B11	Frecuencia de giro	Caudal de permeado
5c	PID	PTM TM1	Bomba B11	Frecuencia de giro	Caudal de permeado
6a	PID	Caudal B21	Bomba B21	Frecuencia de giro	
6b	PID	Nivel Reactor	Bomba B21	Frecuencia de giro	Caudal de permeado
6c	PID	PTM TM2	Bomba B21	Frecuencia de giro	Cauda de permeado
7a	PID	Presión salida C1	Soplante C1	Frecuencia de giro	Caudal de gas C1
7b	PID	Caudal gas C1	Soplante C1	Frecuencia de giro	Presión salida C1
8a	PID	Presión salida C2	Soplante C2	Frecuencia de giro	Caudal gas C2
8b	PID	Caudal gas C2	Soplantes C2	Frecuencia de giro	Presión salida C2
9	PID	Presión Reactor	Válvula V2	Apertura de válvula	Descarga de biogás
10	ON-OFF	Purga de fangos	Válvula V1	Apertura de válvula	
11	ON-OFF	Temperatura	Válvula V3	Apertura de válvula	Caudal de agua de refrigeración o calefacción

Tabla 5: resumen de los elementos de control de la planta piloto.

La tabla muestra:

- ✓ El tipo de algoritmo aplicable a cada uno de los lazos de control implementados.
- ✓ El elemento sobre el que se actúa.
- ✓ La variable a controlar por cada uno de los controladores implementados.
- ✓ La variable manipulada para realizar la acción de control.
- ✓ La variable que es manipulada indirectamente por la acción sobre el elemento final de control (variador de frecuencia o válvula).

#### **4.3.3. Automatización y monitorización de la planta piloto**

Hasta el momento se ha expuesto la revisión de los elementos que componen la instrumentación, así como los algoritmos de control definidos para el correcto funcionamiento y operación de la planta. Toda esta instrumentación se encuentra conectada a una red de transferencia de información, compuesta por transmisores, tarjetas de entradas y salidas analógicas y digitales, un autómatas programable PLC (ver figura 22) y un ordenador personal.

Tanto el control de la planta como la adquisición de datos se realizan a partir de un software de adquisición de datos y supervisión de sistemas (SCADA en sus siglas en inglés) instalado en el ordenador de la planta, el cual centraliza todas las señales, controles e información enviadas por el PLC. El PLC recibe las señales de los diferentes sensores y actuadores y reenvía las señales comandadas desde el SCADA a los actuadores instalados en la planta piloto.



**Figura 22: PLC instalado en la planta piloto.**

El PLC y el SCADA están debidamente programados y contienen los algoritmos de control, la secuencia de funcionamiento de los ciclos de operación de la membrana y los modos de funcionamiento de los equipos. Desde el SCADA es posible introducir las consignas de todos los elementos, de manera que se puede establecer el régimen de operación deseado en cada momento.

La figura 23 muestra la pantalla principal del SCADA, desde la cual se puede acceder a cada uno de los elementos de la planta, establecer el régimen de operación, recopilar información y visualizar las variables en tiempo real.

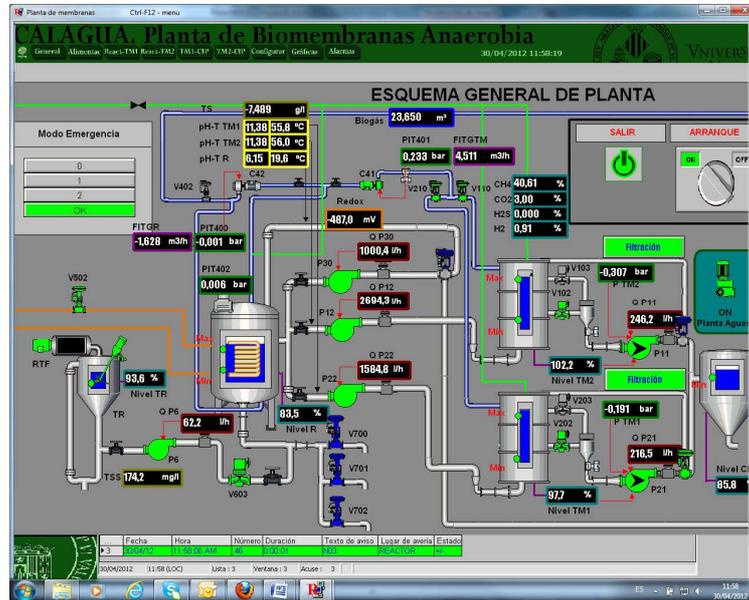


Figura 23: Interfaz principal del SCADA.

El SCADA genera automáticamente un registro de datos con las variables monitorizadas. Estas variables son almacenadas con la frecuencia temporal que elija el usuario. Las variables registradas en estos momentos son: frecuencia de giro de las bombas, frecuencia de giro de las soplantes, caudales suministrados por las bombas y soplantes (registrados mediante los correspondientes caudalímetros), presión de soplado suministrada por cada soplante (registrada mediante el sensor de presión correspondiente), presión de biogás del sistema, nivel de todos los tanques (registrados mediante la sonda de nivel correspondiente), PTM de cada uno de los módulos de membranas, etapa en la que se encuentra el ciclo de operación del módulo de membranas, pH y temperatura del fango, redox del fango, apertura de la válvula de descarga de biogás, volumen de fango purgado y volumen acumulado neto de permeado.

#### 4.4. Métodos analíticos

DQO, Nitrógeno Amoniacal ( $N-NH_4$ ), Ortofosfatos ( $P-PO_4$ ), Sulfatos ( $S-SO_4$ ), Sólidos Totales (ST), Sólidos Suspendidos Totales (SST) y Sólidos Suspendidos Volátiles (SSV), fueron determinados de acuerdo con *Estandar Methods* (APHA, 2005). Ácidos Grasos Volátiles (AGV) y Alcalinidad (Alk) fueron determinados mediante titrinación usando el método propuesto por WRC (1992).

#### 4.5. Operación de la planta piloto

La operación a largo plazo del sistema SAnMBR se llevó a cabo a diferentes TRC (de 30 a 70 días), un TRH entre 6 y 26 horas y unos valores de carga orgánica entre 0,3 y 1,1 kgDQO·m<sup>-3</sup>·d<sup>-1</sup>. La temperatura varió entre 15 y 33 °C. La concentración de STLM estuvo comprendida entre 8 y 32 g·L<sup>-1</sup>. En función del proceso físico de separación, se estableció J<sub>20</sub> entre 9 y 13,3 LMH, con unos valores de DEG de 0,23 Nm<sup>3</sup>·h<sup>-1</sup>·m<sup>-2</sup>. La velocidad ascensional del fango sobre la membrana se estableció en 3,6 mm·s<sup>-1</sup>, dado que el caudal de fango a través del módulo de membrana se fijó en 2700 L·h<sup>-1</sup>. El ciclo completo de operación de la membrana comprendió las siguientes etapas: ciclo básico de filtración –relajación (F-R) de 300 segundos (250 s de filtración y 50 s de relajación), 30 s de contralavado cada 10 ciclos F-R, 40 s de ventilación cada 10 ciclos F-R y 30 s de desgasificación cada 50 ciclos F-R.

#### 4.6. Método de flujo escalonado modificado

Para la determinación del flujo crítico para cada condición de operación se ha utilizado una variación del método de flujo escalonado propuesto por Robles *et al.* (2012), que en este trabajo llamamos método de flujo escalonado modificado. Esta modificación establece una sucesión de etapas de filtración y relajación consecutivas. La duración de cada etapa se fijó en 15 minutos, de manera que cada ciclo filtración/relajación tuvo una duración de media hora. Partiendo de un caudal de permeado inicial entre 200 y 400 L·h<sup>-1</sup>, en cada ciclo se incrementó este caudal en 50 L·h<sup>-1</sup> hasta que la presión transmembrana alcanzaba un valor límite fijado en 0,4 bar. Este ensayo se llevó a cabo a distintas concentraciones de sólidos y distintas DEG con el objetivo de determinar las condiciones subcríticas de filtración para cada rango de operación de las membranas.

Mientras la filtración se encuentre en condiciones subcríticas, la PTM y el flujo de permeado seguirán una relación lineal. Sin embargo, una vez superado el flujo crítico, el incremento de la PTM será cada vez mayor, tal y como se muestra en la figura 24. Esto indica que el ensuciamiento ha comenzado a producirse.

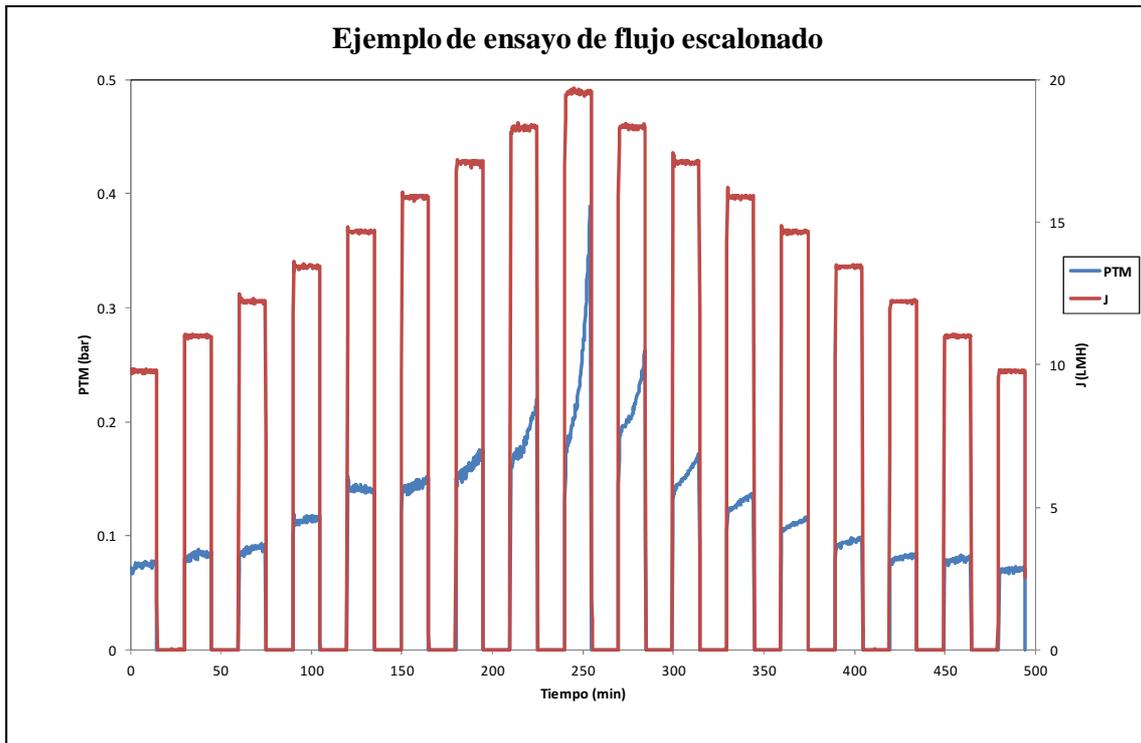


Figura 24: Esquema de ensayo completo basado en el método de flujo escalonado.

Con un mayor grado de detalle, la figura 25 muestra la información extraída de cada uno de los escalones llevados a cabo durante los experimentos.

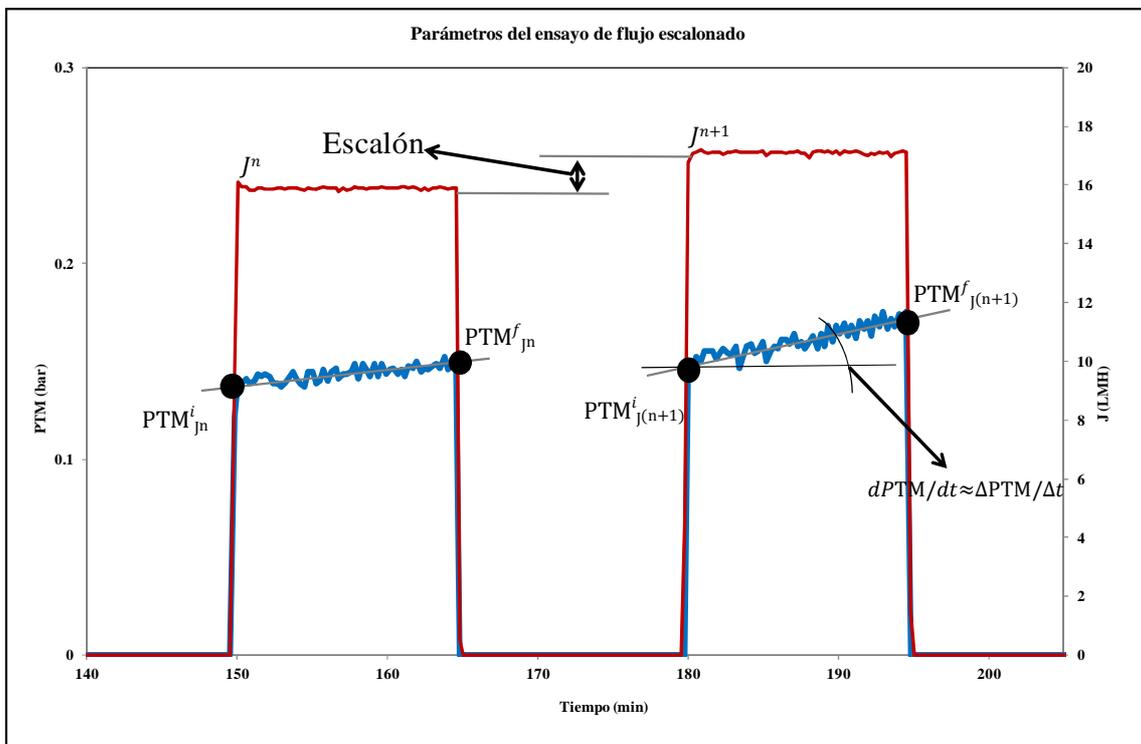


Figura 25: Parámetros obtenidos en los ensayos del método de flujo escalonado.

En cada etapa de filtración se obtiene la PTM media y la velocidad de ensuciamiento ( $dPTM/dt$ , *fouling rate*), a partir de los valores de la PTM al inicio y al final de la etapa de filtración. Por debajo del flujo crítico, la PTM media tendrá una relación lineal con el flujo de permeado y la velocidad de ensuciamiento permanecerá en valores bajos. Por el contrario, una vez superado el flujo crítico desaparece la relación lineal de la PTM y el flujo y los valores de la velocidad de ensuciamiento aumentan considerablemente. La representación de la velocidad de ensuciamiento frente a la presión transmembrana media de cada etapa de filtración, muestra claramente el cambio de tendencia que se produce una vez sobrepasado el flujo crítico. Un ejemplo de dicha representación se muestra en la figura 26.

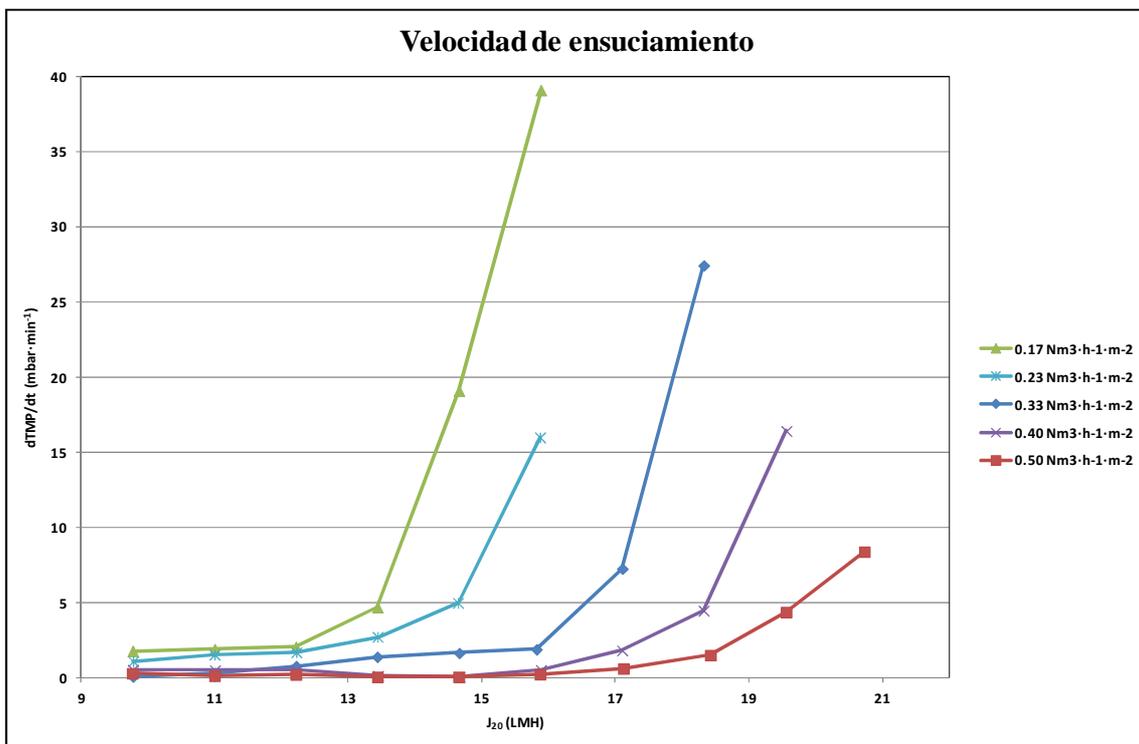


Figura 26: Evolución de la velocidad de ensuciamiento a diferentes caudales de biogás.

Los ensayos realizados en este trabajo comprenden un rango de concentración de sólidos totales entre 11,5 y 28,5 g·L<sup>-1</sup>. El caudal de biogás suministrado se varió entre 5 y 12,5 L·h<sup>-1</sup>, lo que resulta en un rango de demanda específica de gas de entre 0,17 y 0,5 Nm<sup>3</sup>·h<sup>-1</sup>·m<sup>-2</sup>. La velocidad ascensional del fango sobre la superficie se estableció en 2,7 mm·s<sup>-1</sup> al fijar el caudal de fango que entra en el módulo de membrana en 2700 L·h<sup>-1</sup>. La tabla 6 muestra un resumen de los experimentos incluidos en el presente trabajo.

Experimento	ST (g·L <sup>-1</sup> )	DEG (Nm <sup>2</sup> ·h <sup>-1</sup> ·m <sup>2</sup> )	Experimento	ST (g·L <sup>-1</sup> )	DEG (Nm <sup>2</sup> ·h <sup>-1</sup> ·m <sup>2</sup> )
1	23.0	0.17	14	22.5	0.17
2	23.0	0.25	15	22.5	0.23
3	23.0	0.33	16	22.5	0.33
4	23.0	0.42	17	22.5	0.42
5	23.0	0.50	18	28.5	0.17
6	11.5	0.17	19	28.5	0.23
7	11.5	0.23	20	28.5	0.33
8	11.5	0.33	21	14.0	0.17
9	18.5	0.17	22	14.0	0.25
10	18.5	0.23	23	14.0	0.33
11	18.5	0.33	24	14.0	0.17
12	18.5	0.42	25	14.0	0.25
13	18.5	0.50	26	14.0	0.33

**Tabla 6: Resumen de ensayos realizados para la determinación de las condiciones críticas de filtración.**

La distribución de los experimentos es la siguiente:

- Experimentos 1 a 5: se trata de experimentos realizados antes del inicio de este Trabajo Fin de Máster. Se utilizan para comparar con la serie de experimentos 14-17, que sí se realizaron durante la elaboración del presente trabajo, con el fin de establecer si se ha producido ensuciamiento irreversible en la membrana desde el inicio de su operación.
- Experimentos 6 a 20: son las series de experimentos llevados a cabo durante el presente trabajo a diferentes concentraciones de sólidos totales y DEG, con el fin de estudiar la influencia de ambas variables en el comportamiento de la membrana durante la filtración.
- Experimentos 21 a 26: se trata de los experimentos llevados a cabo a una misma concentración de sólidos totales antes de la regeneración química de la membrana (experimentos 21 a 23) y después de la regeneración química (experimentos 24 a 26). De esta manera puede establecerse el ensuciamiento irrecuperable presente en las membranas.

#### **4.7. Cálculo de los parámetros de filtración**

Dado que los experimentos se realizan en una planta piloto sometida a la temperatura ambiente, es necesario normalizar los datos obtenidos a una temperatura estándar de 20°C. De esta manera se tiene en cuenta la dependencia del flujo de permeado con la viscosidad del fluido. La ecuación 1 muestra el cálculo del flujo normalizado a 20°C ( $J_{20}$ ) a partir de los valores a temperatura ambiente ( $J_T$ ):

$$J_{20} = J_T \cdot e^{-0.0239(T-20)} = J_T \cdot f_T \text{ (Ecuación 1)}$$

La permeabilidad de la membrana normalizada  $K_{20}$  se calcula usando un modelo simple de filtración a partir de los datos de flujo (J) y presión transmembrana (PTM) obtenidos en los experimentos. Su cálculo viene determinado por la ecuación 2:

$$K_{20} = \frac{1}{R_T \cdot \eta_{20}} = \frac{J_T \cdot f_T}{PTM} \text{ (Ecuación 2)}$$

En este caso,  $\eta_{20}$  corresponde a la viscosidad del agua a la temperatura de referencia (20 °C).

La resistencia total de la membrana ( $R_T$ ) se calcula a partir de la ecuación 2, tal y como muestra la ecuación 3:

$$R_T = \frac{1}{K_{20} \cdot \eta_{20}} \text{ (Ecuación 3)}$$

En este trabajo,  $R_T$  se asume como la suma de resistencias parciales: resistencia de la membrana ( $R_m$ ), resistencia de la torta ( $R_C$ ), resistencia irreversible ( $R_I$ ) y resistencia irrecuperable ( $R_{IR}$ ), tal y como muestra la ecuación 4. Estas dos últimas resistencias son las responsables de la disminución de la eficacia de la membrana a lo largo del tiempo, puesto que no es posible eliminarla mediante métodos físicos de limpieza. La operación del módulo en régimen subcrítico persigue, al menos en teoría, que no aumente de forma considerable la resistencia irreversible e irrecuperable.

$$R_T = R_m + R_C + R_I + R_{IR} \text{ (Ecuación 4)}$$

La presión transmembrana media de cada escalón se obtiene de la ponderación de cada presión instantánea a lo largo de cada escalón, tal y como muestra la ecuación 5. En las siguientes ecuaciones  $J^n$  representa en valor del flujo (J) en el escalón n ( $^n$ ), j indica el valor instantáneo de la variable medida o calculada en cada caso (PTM, K o  $R_T$ ) y z es el número total de valores instantáneos de cada variable en el escalón

$$PTM_{J^n}^{MED} = (\sum_{j=1}^z PTM_{J^n}^j) / \sum z \text{ (Ecuación 5)}$$

En cuanto a la permeabilidad media estándar, se obtiene promediando las permeabilidades estándar a lo largo de cada escalón, según la ecuación 6:

$$K_{20 J^n}^{MED} = (\sum_{j=1}^z K_{20 J^n}^j) / \sum z \text{ (Ecuación 6)}$$

La resistencia total media para cada J, se obtiene promediando las resistencias instantáneas a lo largo de cada escalón, según la ecuación 7:

$$R_{T J^n}^{MED} = (\sum_{j=1}^z R_{T J^n}^j) / \sum z \quad (\text{Ecuación 7})$$

Finalmente, para calcular la velocidad de ensuciamiento (*fouling rate*), se aproxima la derivada de la presión transmembrana a un incremento finito entre la presión al inicio (indicado por el supraíndice i) y al final del escalón (indicado por el supraíndice f):

$$\frac{dPTM}{dt} \approx \frac{\Delta PTM}{\Delta t} = \frac{PTM_{J^n}^f - PTM_{J^n}^i}{t_{J^n}^f - t_{J^n}^i} \quad (\text{Ecuación 8})$$

De esta manera, la ecuación 1 permite calcular el flujo de permeado normalizado y este valor, junto con la PTM, definen la permeabilidad mediante la ecuación 2. La ecuación 3 permite conocer la resistencia total, ya que la viscosidad es conocida. El resto de parámetros se obtienen de aplicar las ecuaciones 5, 6, 7 y 8.

#### 4.8. Regeneración química de las membranas

Para la regeneración química de la membrana se siguió un protocolo en dos etapas. La primera de ellas es una etapa oxidante. Primero se detiene la operación de la membrana y se drena completamente el tanque. Tras sacar el fango se limpia el tanque y se rellena con agua limpia a la que se añade NaOCl hasta una concentración de 2000 ppm. Posteriormente se adiciona NaOH hasta alcanzar un pH de 12. Las membranas permanecen en estas condiciones durante 6 horas. Tras este tiempo se drena el tanque y se limpia para evitar que los reactivos reaccionen en la siguiente etapa.

El segundo paso consiste en una etapa ácida. El procedimiento es similar a la etapa anterior. Se llena el tanque con agua limpia y se añade ácido cítrico hasta alcanzar una concentración de 2000 ppm. En el caso de no obtener un pH de 2,5 se añade la cantidad de HCl necesaria hasta alcanzar dicho valor. Las membranas permanecen en estas condiciones durante 6 horas. Tras completar la etapa se lavan tanque y membranas con agua limpia.

## **5. RESULTADOS Y DISCUSIÓN**



## 5. RESULTADOS Y DISCUSIÓN

Tal y como se ha explicado anteriormente, los datos correspondientes al conjunto de experimentos llevados a cabo a una concentración de 11,5, 18,5, 22,5 y 28,5 g·L<sup>-1</sup> de sólidos totales permiten el cálculo de los parámetros del modelo de filtración y la determinación del flujo crítico a partir de la velocidad de ensuciamiento. Los resultados que se presentan a continuación se basan en ensayos realizados a lo largo de un periodo de 810 días, divididos de la siguiente manera.

- Apartado 5.1: Ensayos puntuales: determinación de las condiciones críticas de filtración. En primer lugar se presentan los resultados de los ensayos que se realizaron con el fin de determinar las condiciones críticas de filtración de las membranas tras 500 días de operación ininterrumpida de la planta piloto, aproximadamente. En segundo lugar, se comparan algunos de los resultados obtenidos con otros resultantes de ensayos puntuales realizados con un año de anterioridad, con el fin de comprobar si se ha producido ensuciamiento irreversible. Finalmente se presentan los resultados antes y después de una etapa de limpieza química de las membranas. Esta etapa de regeneración se llevó a cabo tras 800 días de funcionamiento, de manera que se puede comprobar en qué grado se ha desarrollado el ensuciamiento irreversible de las membranas y si se ha generado ensuciamiento irrecuperable.
- Apartado 5.2: Revisión bibliográfica de resultados en la determinación de flujos críticos. En este apartado se presentan los resultados de ensayos puntuales de determinación de flujos críticos bajo diferentes condiciones de operación encontrados en la bibliografía, con el fin de compararlos con los obtenidos en este trabajo.
- Apartado 5.3: Comparación del comportamiento a largo plazo. En este apartado se evalúa el proceso de filtración durante los 810 días de funcionamiento.

### 5.1. Ensayos puntuales de filtración: determinación de las condiciones críticas de filtración

#### 5.1.1. Influencia del flujo transmembrana (J) sobre la presión transmembrana media (PTM<sub>med</sub>)

Las figuras 27, 28, 29 y 30 muestran la influencia del J sobre la PTM<sub>med</sub> (calculada a partir de la ecuación 5) resultante de la aplicación del método de flujo escalonado. Los resultados fueron obtenidos a concentraciones de sólidos totales de 11,5, 18,5, 22,5 y 28,5 g·L<sup>-1</sup> y DEG de 0,17, 0,23, 0,33, 0,42 y 0,5 Nm<sup>3</sup>·h<sup>-1</sup>·m<sup>-1</sup>.

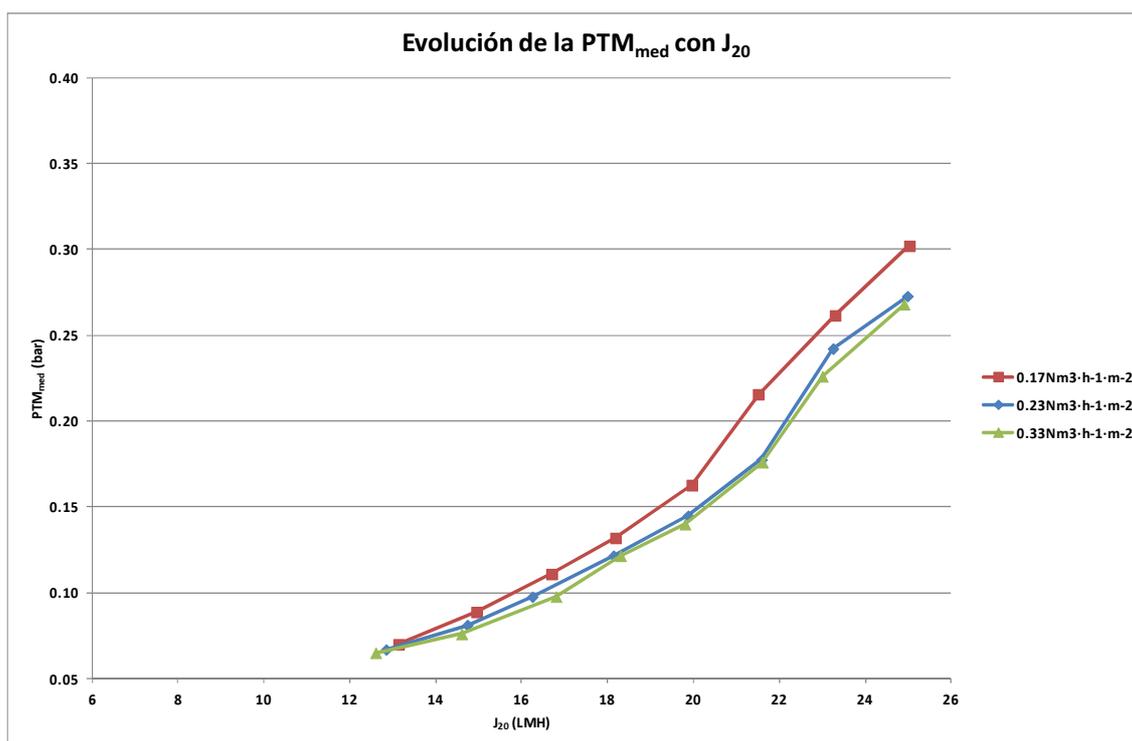


Figura 27: Efecto del  $J_{20}$  sobre la  $PTM_{med}$  en un ensayo puntual de flujo escalonado a una concentración de sólidos totales de  $11,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  (DEG:  $0,17$ ,  $0,23$  y  $0,33 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-1}$ ).

Como puede observarse en la figura 27, la PTM aumenta a medida que lo hace el  $J_{20}$ . Este comportamiento concuerda con el hecho de que un aumento en el flujo de permeado supone un aumento en la fuerza impulsora del proceso de filtración, la PTM, tal y como establece el modelo representado en la ecuación 2.

Si la concentración de sólidos totales es baja y/o la DEG es alta, pueden darse las condiciones para que la formación de torta no sea significativa y por lo tanto  $R_C$  sea despreciable. La única resistencia entonces sería la aportada por la propia membrana ( $R_M$ ) y la del ensuciamiento irreversible e irrecuperable ( $R_I$  y  $R_{IR}$ ) si lo hubiese, que pueden asumirse constantes en ensayos puntuales de filtración a baja presión, ya que la compresión de la membrana y de la capa de ensuciamiento irreversible e irrecuperable bajo estas condiciones puede considerarse despreciable. Realizando estas aproximaciones, la ecuación 2 podría ser simplificada, tal y como muestra la ecuación 9:

$$PTM = cte \cdot J_T \cdot f_T \text{ (Ecuación 9)}$$

Por lo tanto, el modelo predice un comportamiento lineal a bajas concentraciones de sólidos totales y/o altos DEG. Con concentraciones de sólidos mayores y/o DEG más bajas, el comportamiento de la PTM dejará de ser lineal debido a las contribuciones cada vez mayores de  $R_C$ . Para la situación mostrada en la figura 27 ( $11,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ ), la desviación comienza a partir de un flujo de 20 LMH. Este comportamiento también puede observarse en los ensayos a 18,5,

22,5 y 28,5 g·L<sup>-1</sup> (ver figuras 28, 29 y 30, respectivamente). A medida que aumenta la concentración de sólidos totales o disminuye la DEG, es menor el valor del flujo a partir del cual se produce la desviación del comportamiento lineal.

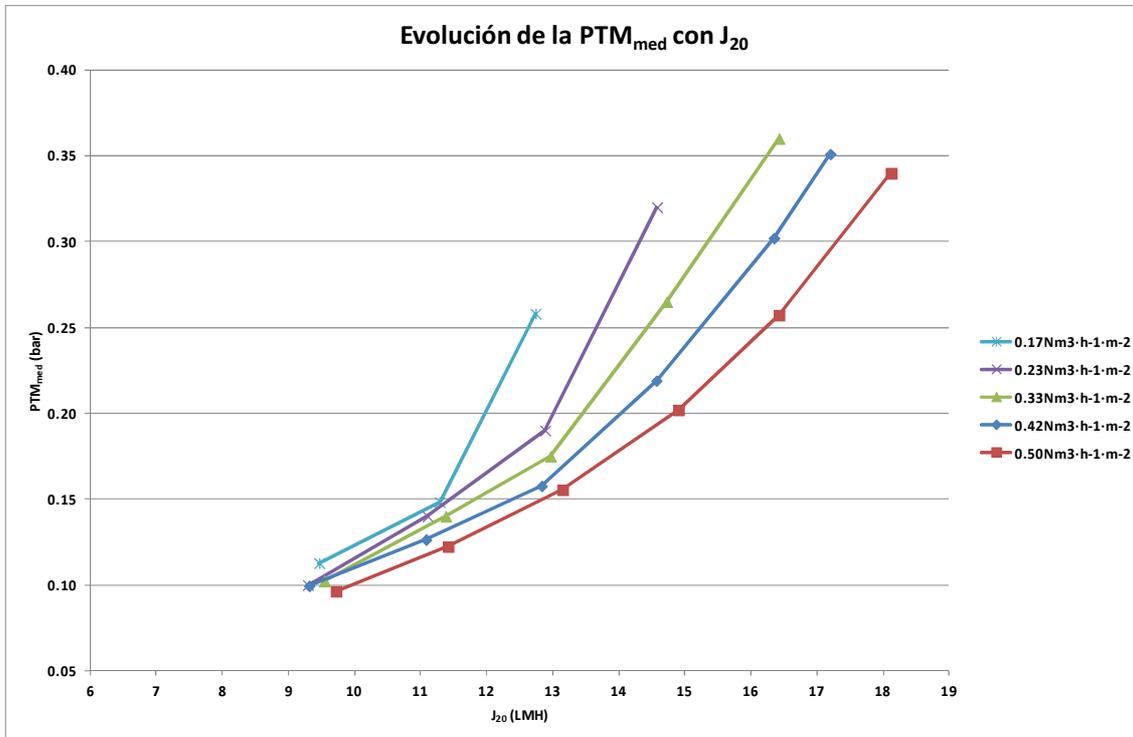


Figura 28: Efecto del  $J_{20}$  sobre la  $PTM_{med}$  en un ensayo puntual de flujo escalonado a una concentración de sólidos totales de 18,5 g·L<sup>-1</sup> (DEG: 0,17, 0,23, 0,33, 0,42 y 0,5 Nm<sup>3</sup>·h<sup>-1</sup>·m<sup>-1</sup>).

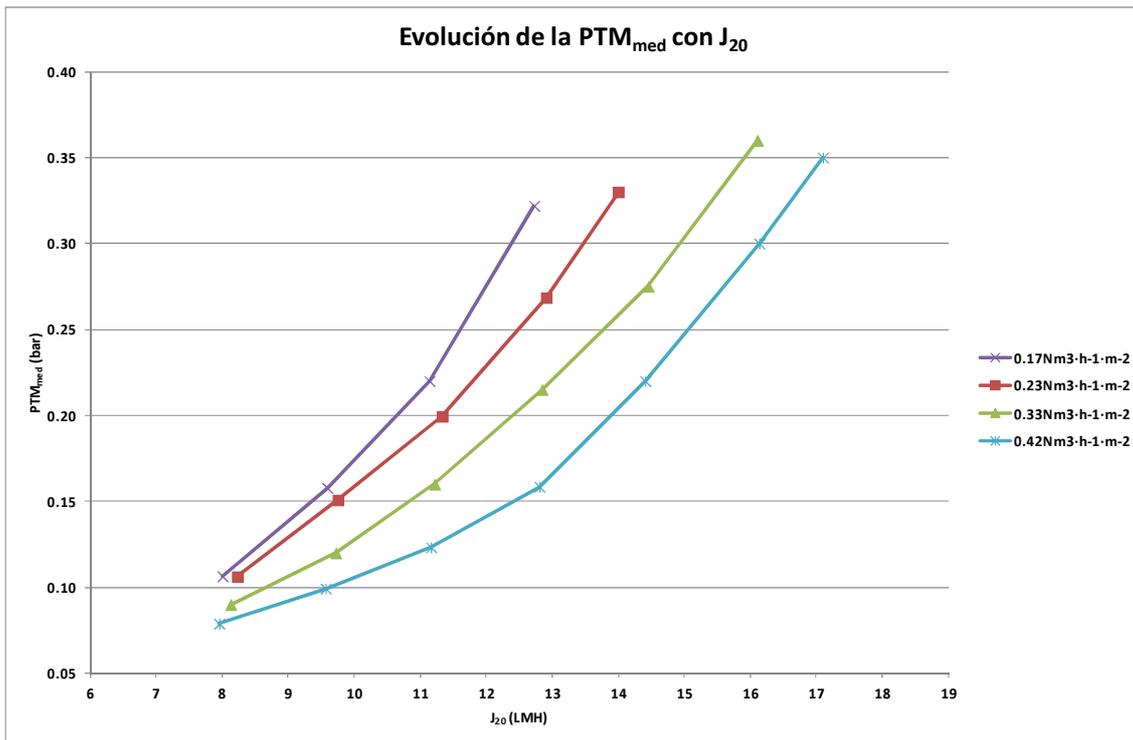


Figura 29: Efecto del  $J_{20}$  sobre la  $PTM_{med}$  en un ensayo puntual de flujo escalonado a una concentración de sólidos totales de  $22,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  (DEG: 0,17, 0,23, 0,33 y  $0,42 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$ ).

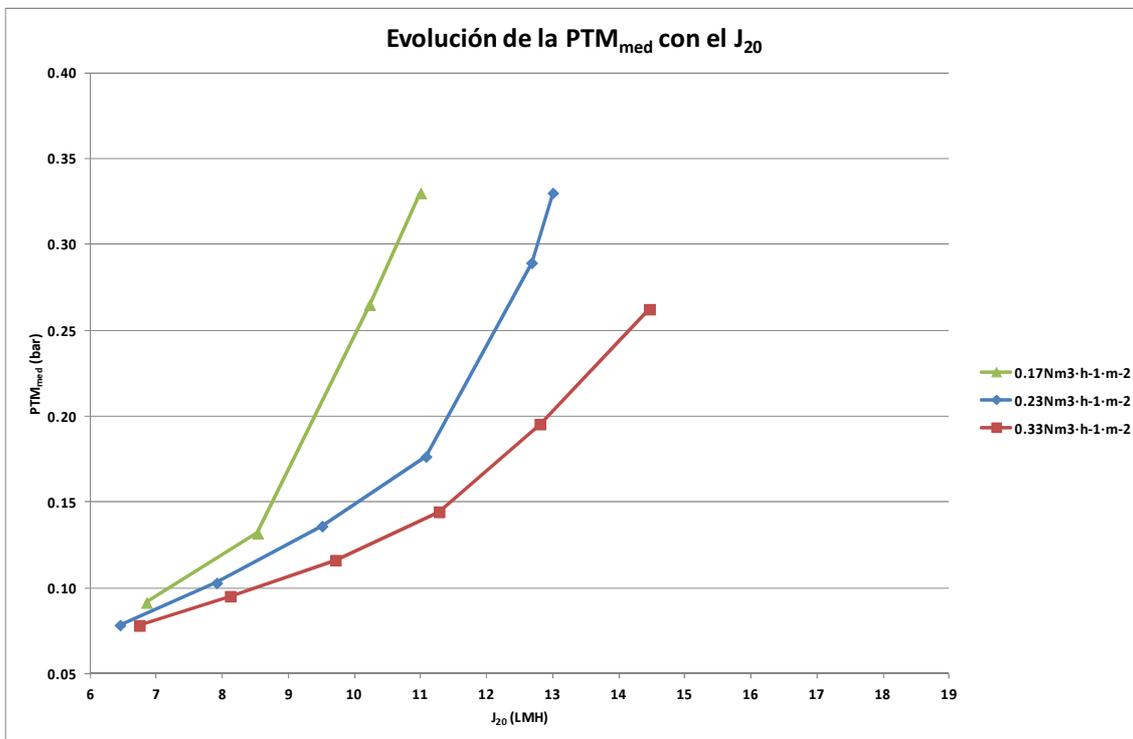


Figura 30: Efecto del  $J_{20}$  sobre la  $PTM_{med}$  en un ensayo puntual de flujo escalonado a una concentración de sólidos totales de  $28,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  (DEG: 0,17, 0,23 y  $0,33 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$ ).

Por otra parte, puede observarse que, a medida que aumenta la concentración de sólidos totales, el efecto de la DEG se hace notorio a flujos menores. Para una concentración de sólidos de  $11,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  (figura 27) apenas hay diferencia en la PTM a DEG de 0,17, 0,23 y  $0,33 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$  hasta alcanzar un flujo de 20 LMH. Es más, no se observan diferencias significativas entre los experimentos a 0,23 y  $0,33 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$ , lo cual supone que un aumento en la DEG no implica beneficio significativo en cuanto a controlar la PTM en estas condiciones.

En el experimento con una concentración de sólidos totales de  $18,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  (figura 28), la divergencia del comportamiento lineal ocurre a 11,5 LMH. A este valor de flujo, el experimento con DEG de  $0,17 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$  comienza a divergir del experimento con una DEG de  $0,23 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$ , lo cual indica que el ensuciamiento ha comenzado a cobrar importancia. Para una concentración de sólidos de  $22,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  (figura 29) este efecto se observa para un flujo de 10,5 LMH, mientras que para una concentración de  $28,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  (figura 30) se aprecia a un flujo de 8,5 LMH aproximadamente. Este comportamiento indica que la importancia del efecto de la DEG sobre el proceso de filtración aumenta a medida que lo hace la concentración de sólidos totales, puesto que sus efectos en cuanto a moderar los incrementos de la PTM se observan a flujos cada vez menores.

También es posible analizar el efecto de la DEG sobre la PTM para una concentración de sólidos totales establecida. En los experimentos realizados a  $11,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  de sólidos totales (figura 27) se observa una disminución de la  $PTM_{med}$  de 0,04 bar al aumentar la DEG de 0,17 a  $0,23 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$ , para valores de  $J_{20}$  de aproximadamente 22 LMH. Sin embargo, no se observa variación al aumentar la DEG de 0,23 a  $0,33 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$ . Para una concentración de sólidos totales de  $28,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  (figura 29) y un flujo en torno a 10 LMH, un incremento de 0,17 a  $0,23 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$  en la DEG resulta en una disminución de 0,1 bar en la  $PTM_{med}$ , mientras que un incremento de 0,23 a  $0,33 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$  (lo cual supone el doble que el anterior) provoca una disminución de la presión de sólo 0,03 bar. Por lo tanto, la optimización de las condiciones de operación debe incluir la búsqueda de la mínima DEG que mantenga una PTM adecuada. Mayores valores de la DEG pueden no verse justificados en cuanto a la disminución de la PTM resultante debido a los costes energéticos derivados de aumentar el caudal de biogás.

### **5.1.2. Influencia de J sobre la permeabilidad media ( $K_{med}$ )**

Las figuras 31, 32, 33 y 34 muestran la influencia del J sobre la permeabilidad media (calculada a partir de la ecuación 6) resultante de la aplicación del método de flujo escalonado modificado. Los resultados fueron obtenidos a concentraciones de sólidos totales de 11,5, 18,5, 22,5 y  $28,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  y DEG de 0,17, 0,23, 0,33, 0,42 y  $0,5 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$ .

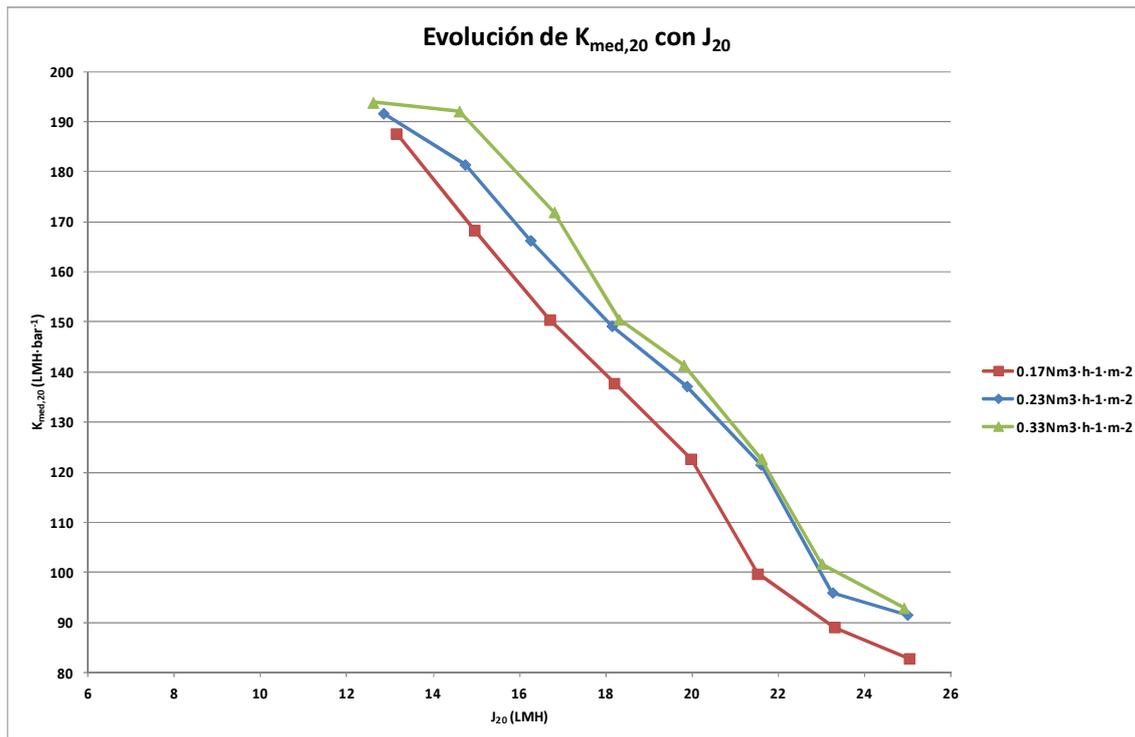


Figura 31: Efecto de  $J_{20}$  sobre la  $K_{med,20}$  en un ensayo puntual de flujo escalonado a una concentración de sólidos totales de  $11,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  (DEG 0,17, 0,23 y  $0,33 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$ ).

La figura 31 muestra cómo, para un valor de sólidos de  $11,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ , la permeabilidad media disminuye a medida que aumenta el flujo de permeado. Un aumento en el caudal de permeado supone que los sólidos se depositen a mayor velocidad y en mayor medida sobre la superficie de la membrana, generando una torta de espesor creciente, y dando como resultado un incremento en las resistencias al flujo y por tanto una disminución de la permeabilidad.

Del mismo modo, la permeabilidad de la membrana es menor a medida que disminuye la DEG, para una concentración de sólidos dada. Una menor DEG supone un menor grado de turbulencia en el tanque de membranas, por lo que se produce un menor desprendimiento de la torta formada durante el proceso de filtración. Por tanto, la mayor cantidad de sólidos depositados sobre la membrana harán disminuir la permeabilidad de la misma.

También puede apreciarse una disminución en los valores de la permeabilidad a medida que aumenta la concentración de sólidos totales. Para concentraciones de sólidos totales de  $11,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  se observaron valores de  $K_{med}$  en el intervalo  $185\text{-}195 \text{ LMH}\cdot\text{bar}^{-1}$  (ver figura 31); para una concentración de  $18,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  la  $K_{med}$  baja hasta  $85\text{-}100 \text{ LMH}\cdot\text{bar}^{-1}$  (ver figura 32); en el caso de una concentración de sólidos totales de  $22,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  queda en  $75\text{-}100 \text{ LMH}\cdot\text{bar}^{-1}$  (ver figura 33); y finalmente, para una concentración de sólidos totales de  $28,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ , la  $K_{med}$  resultante se encuentra en el intervalo entre  $75$  y  $85 \text{ LMH}\cdot\text{bar}^{-1}$  (ver figura 34). Esta disminución en los valores de permeabilidad resalta la importancia de la concentración de sólidos totales en los sistemas de filtración, siendo uno de los parámetros operacionales más

relevantes a la hora de establecer una estrategia de operación encaminada a minimizar el ensuciamiento de las membranas.

Por último, el comportamiento de la permeabilidad con respecto al flujo de permeado sigue una tendencia aproximadamente lineal en el intervalo estudiado para los experimentos con baja concentración de sólidos totales y alta DEG. Por tanto, si se consideran las mismas simplificaciones que en el apartado anterior ( $R_C$  despreciable,  $R_M$ ,  $R_I$  y  $R_{IR}$  constantes), de la combinación de la ecuación 2 y la ecuación 9 se obtiene que la constante de proporcionalidad es precisamente  $1/K_{20}$ .

En los experimentos a mayores concentraciones de sólidos totales o, dentro de alguna serie con estas concentraciones constantes, a bajas DEG, esta relación lineal desaparece, produciéndose una disminución más acelerada de la permeabilidad que en los experimentos a baja concentraciones de sólidos y altas DEG.

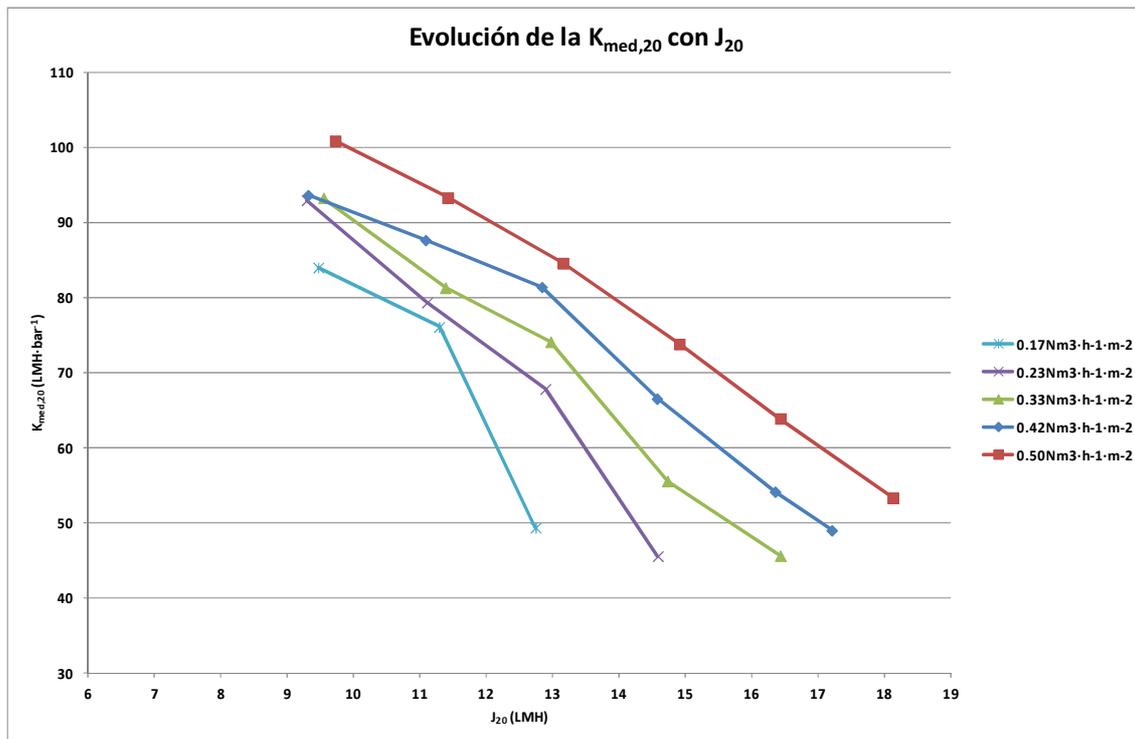


Figura 32: Efecto de  $J_{20}$  sobre la  $K_{med,20}$  en un ensayo puntual de flujo escalonado a una concentración de sólidos totales de  $18,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  (DEG 0,17, 0,23, 0,33, 0,42 y  $0,5 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$ ).

Un ejemplo de lo anteriormente expuesto se da en la figura 32. En ella puede observarse un comportamiento lineal en el caso del experimento a  $0,5 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$  de DEG, mientras que a  $0,17 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$  la linealidad no existe, debido a que se forma torta sobre la superficie de la membrana y ya no se puede considerar  $R_T$  constante. Operar bajo unas condiciones de filtración que supongan bajos valores de permeabilidad de la membrana implica favorecer la formación de ensuciamiento irrecuperable. De modo que si los estudios

económicos del proceso estableciesen como estrategia más favorable el alargamiento de la vida útil de la membrana, no debería operarse a flujos altos y/o DEG bajas para una concentración de sólidos totales dada.

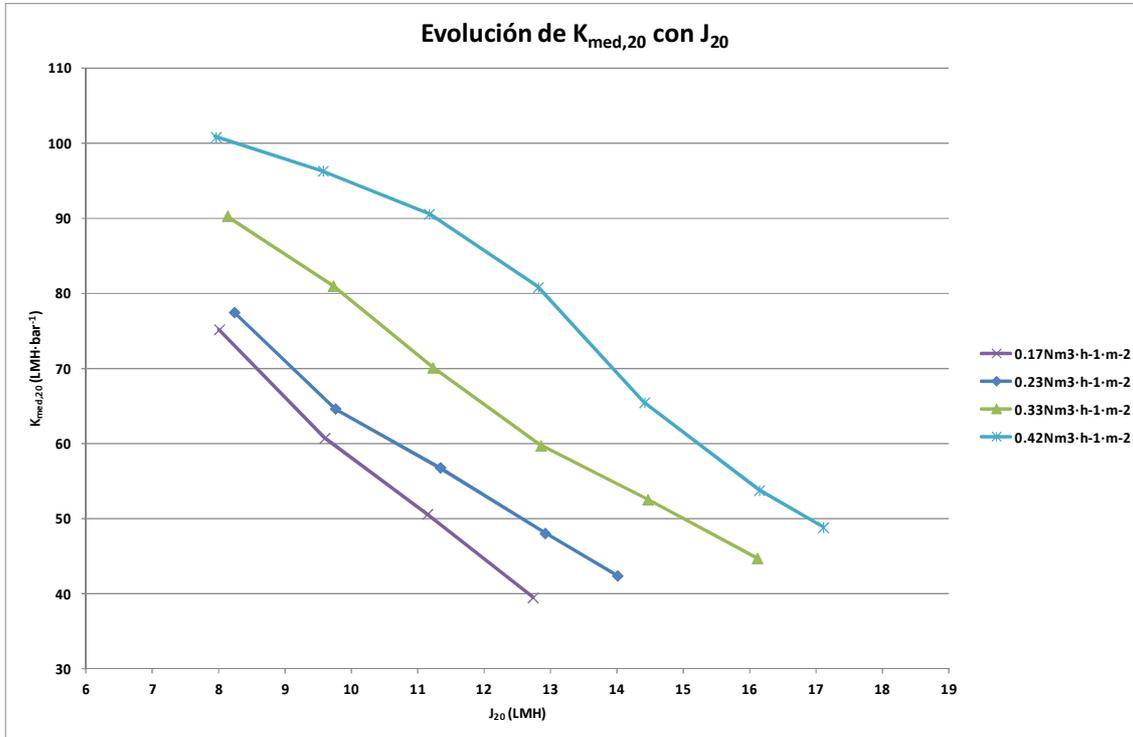


Figura 33: Efecto de  $J_{20}$  sobre la  $K_{med,20}$  en un ensayo puntual de flujo escalonado a una concentración de sólidos totales de  $22,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  (DEG 0,17, 0,23, 0,33 y  $0,42 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$ ).

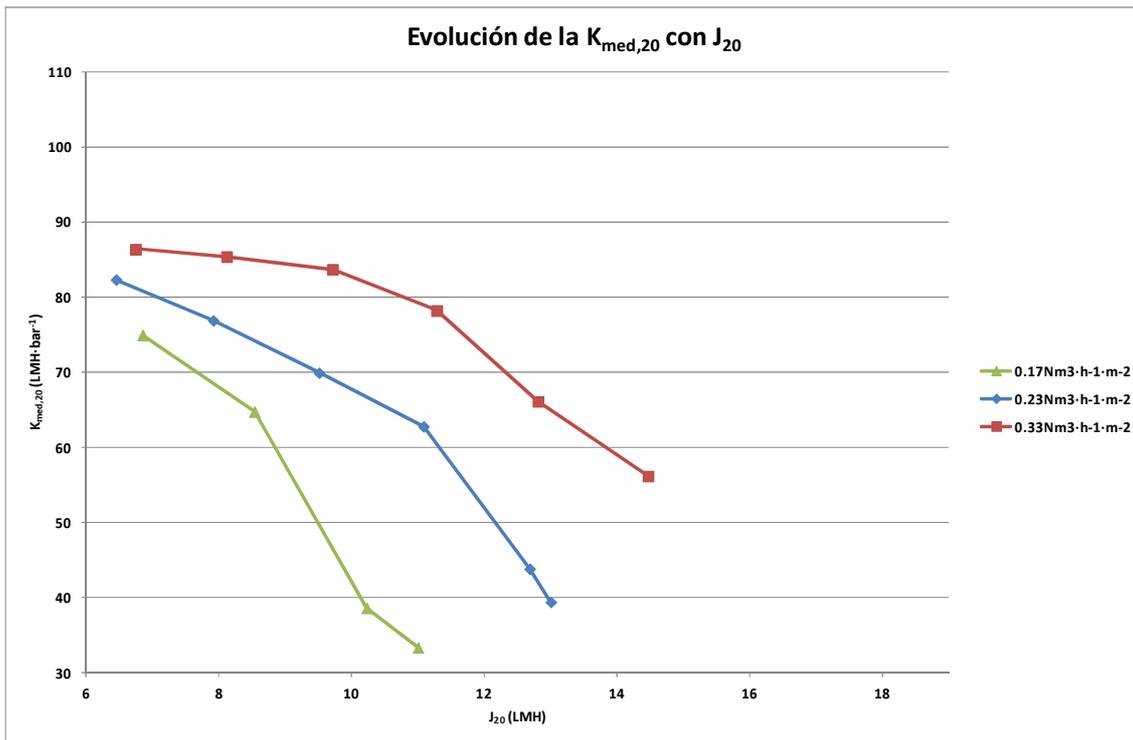


Figura 34: Efecto de  $J_{20}$  sobre la  $K_{med,20}$  en un ensayo puntual de flujo escalonado a una concentración de sólidos totales de  $28,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  (DEG 0,17, 0,23 y 0,33  $\text{Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$ ).

### 5.1.3. Influencia de $J$ sobre la resistencia total media ( $R_T$ )

En las figuras 35, 36, 37 y 38 muestran la influencia del  $J$  sobre la resistencia total media (calculada a partir de la ecuación 7) resultante de la aplicación del método de flujo escalonado modificado. Como en los casos anteriores, los resultados fueron obtenidos a concentraciones de sólidos totales de 11,5, 18,5, 22,5 y  $28,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  y DEG de 0,17, 0,23, 0,33, 0,42 y  $0,5 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$ .

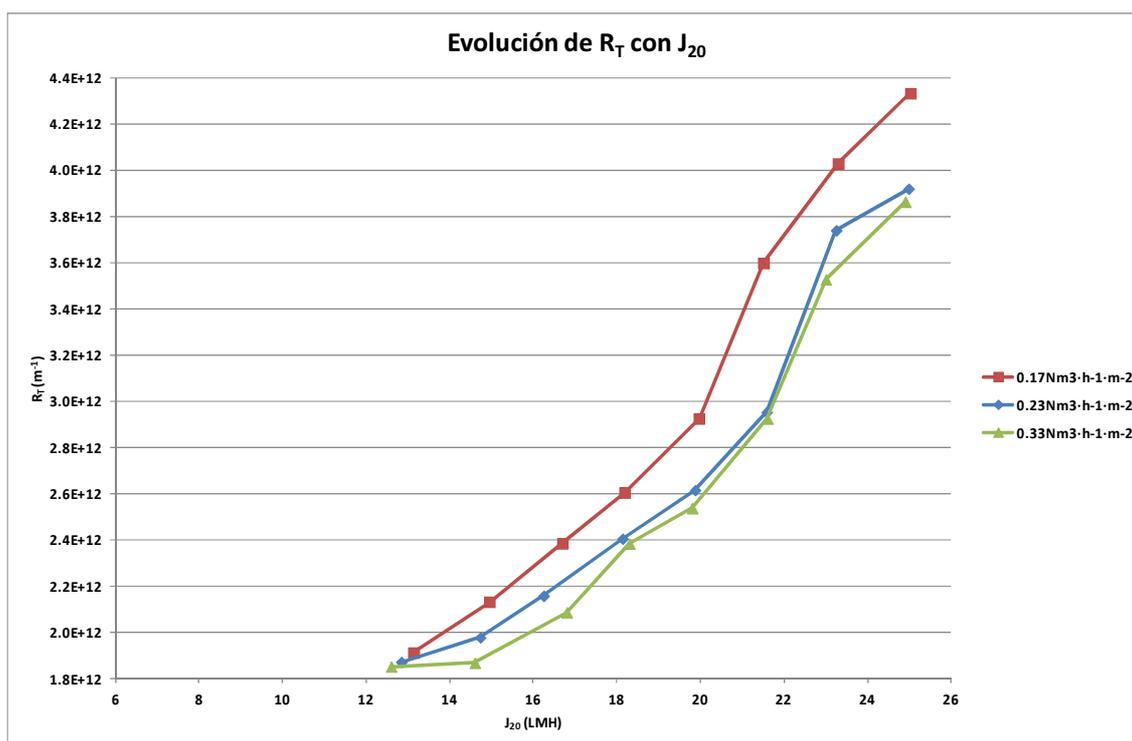


Figura 35: Efecto de  $J_{20}$  sobre la  $R_T$  en un ensayo puntual de flujo escalonado con una concentración de sólidos totales de  $11,5 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$  (DEG 0,17, 0,23 y 0,33  $\text{Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$ ).

Los resultados relativos a la resistencia total son complementarios a los relativos a la permeabilidad. En la figura 35 se observa que, para un mismo valor de concentración de sólidos totales y DEG, la resistencia total media aumenta al aumentar el flujo de permeado, debido a una mayor deposición de sólidos sobre la superficie de la membrana, incrementando por tanto  $R_C$ .

También se confirma que, al disminuir la DEG, la resistencia total aumenta para una misma concentración de sólidos totales y un mismo el flujo de permeado. Esto se debe a que la turbulencia es menor y se desprende una menor cantidad de torta de la superficie de la membrana. El resultado es que la  $R_C$  a bajas DEG es mayor y por lo tanto  $R_T$  también.

Por último, los valores de  $R_T$  crecen al aumentar la concentración de sólidos totales, puesto que existe mayor facilidad para que se produzca la deposición de los sólidos sobre la superficie de la membrana. Este comportamiento se repite a concentraciones de sólidos totales de 18,5, 22,5 y 28,5  $\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$  (ver figuras 36, 37 y 38, respectivamente).

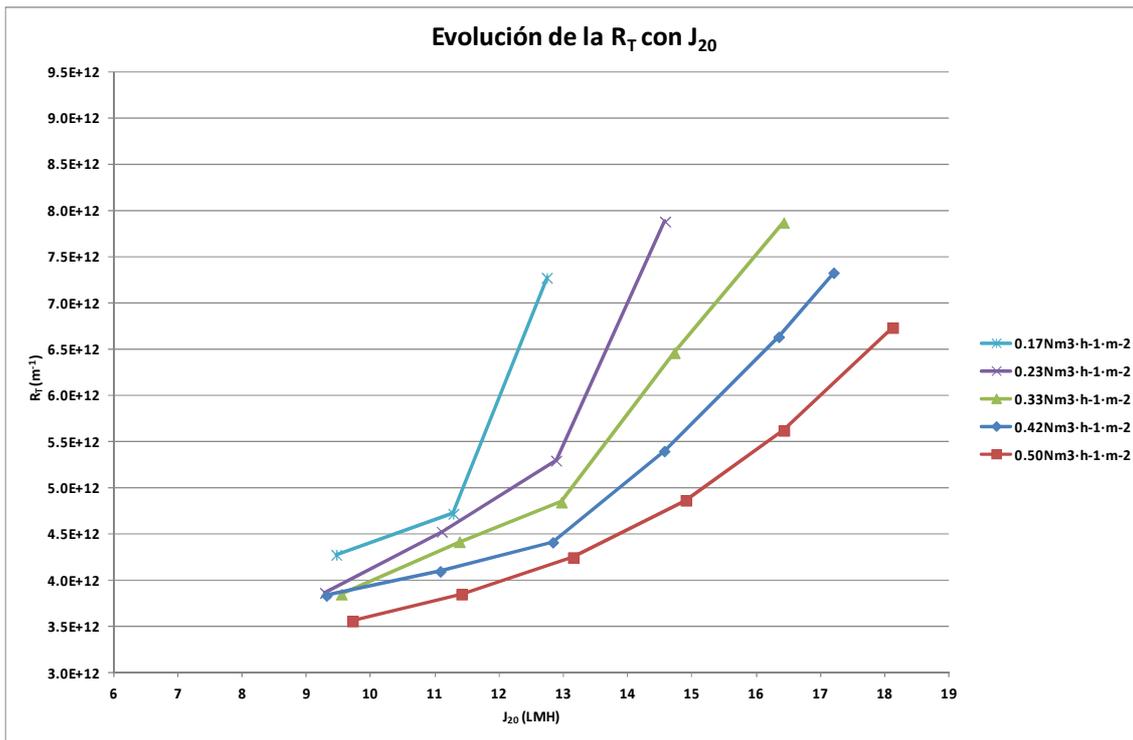


Figura 36: Efecto de  $J_{20}$  sobre la  $R_T$  en un ensayo puntual de flujo escalonado con una concentración de sólidos totales de 18,5 g·L<sup>-1</sup> (DEG 0,17, 0,23, 0,33, 0,42 y 0,5 Nm<sup>3</sup>·h<sup>-1</sup>·m<sup>-2</sup>).

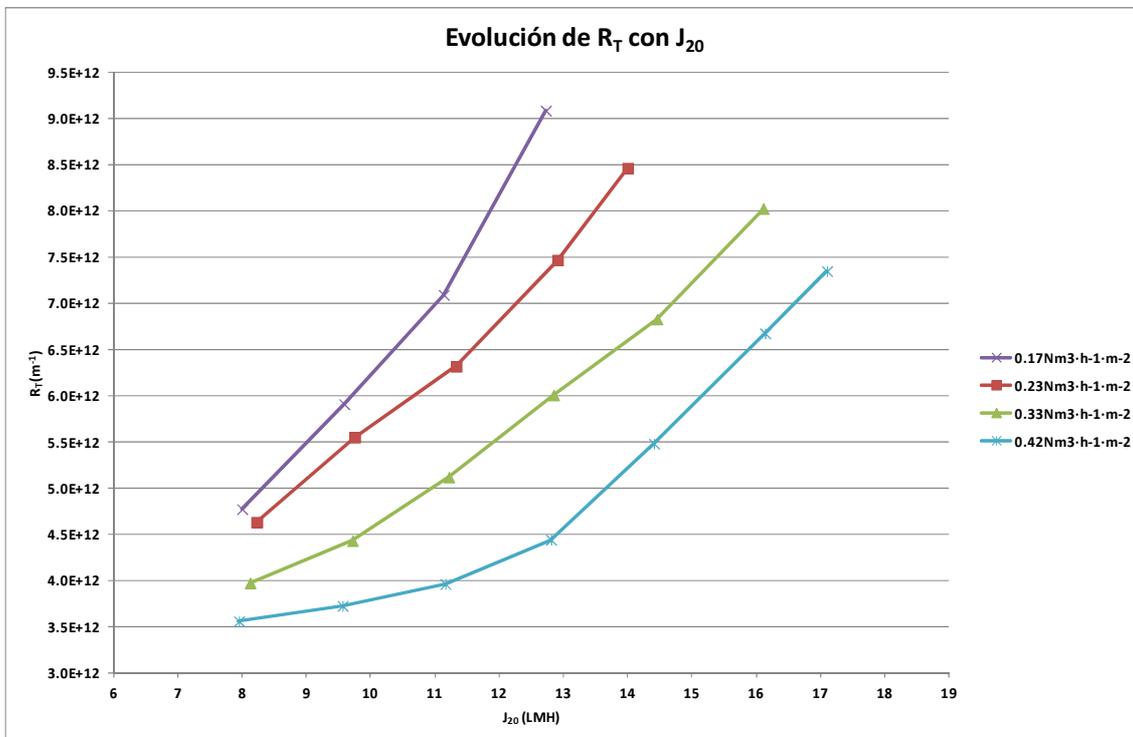


Figura 37: Efecto de  $J_{20}$  sobre la  $R_T$  en un ensayo puntual de flujo escalonado con una concentración de sólidos totales de 22,5 g·L<sup>-1</sup> (DEG 0,17, 0,23, 0,33 y 0,42 Nm<sup>3</sup>·h<sup>-1</sup>·m<sup>-2</sup>).

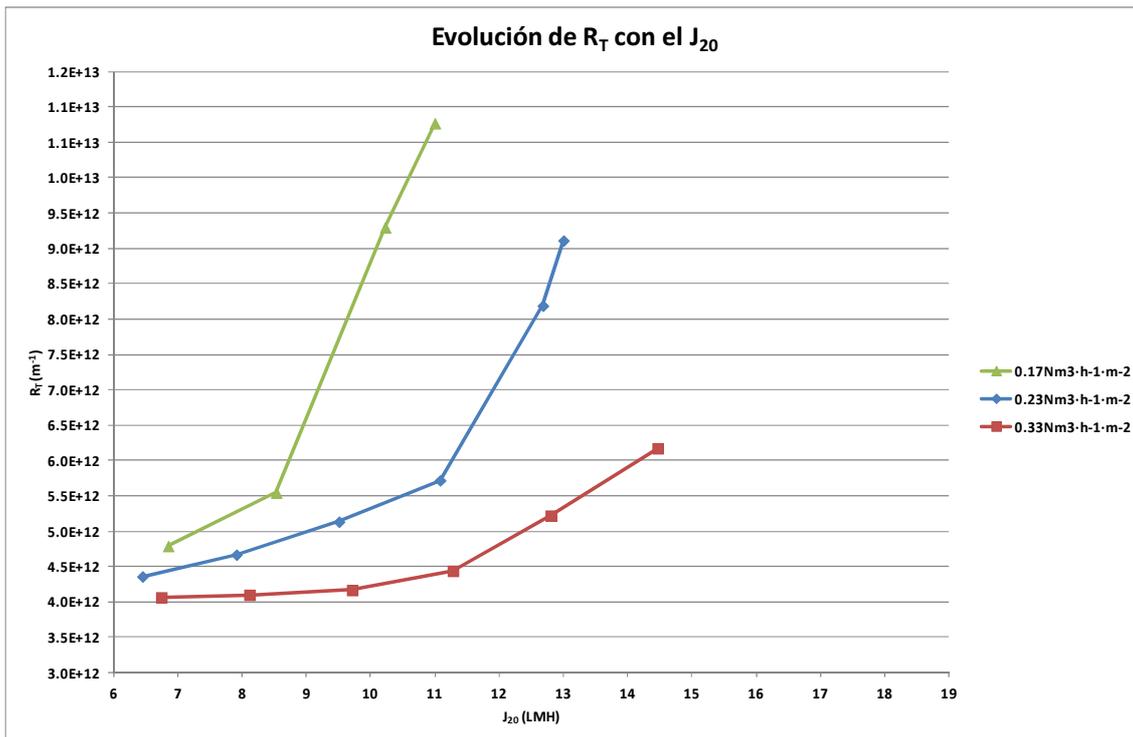


Figura 38: Efecto de  $J_{20}$  sobre la  $R_T$  en un ensayo puntual de flujo escalonado con una concentración de sólidos totales de  $28,5 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$  (DEG 0,17, 0,23 y 0,33  $\text{Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$ ).

#### 5.1.4. Influencia de $J$ sobre la velocidad de ensuciamiento

Las figuras 39, 40, 41 y 42 muestran la influencia del  $J$  sobre la velocidad de ensuciamiento (calculada a partir de la ecuación 8) resultante de la aplicación del método de flujo escalonado modificado.

La figura 39 muestra la influencia de la turbulencia aportada por el biogás inyectado al módulo de membrana sobre la velocidad de ensuciamiento. Esta velocidad de ensuciamiento permanece baja y aproximadamente constante cuando los flujos de permeado son bajos y las DEG altas. Este comportamiento refleja una prácticamente completa eliminación de la torta formada sobre la membrana durante la etapa de filtración. Por lo tanto, en este intervalo, la agitación es suficiente para minimizar el ensuciamiento de la membrana.

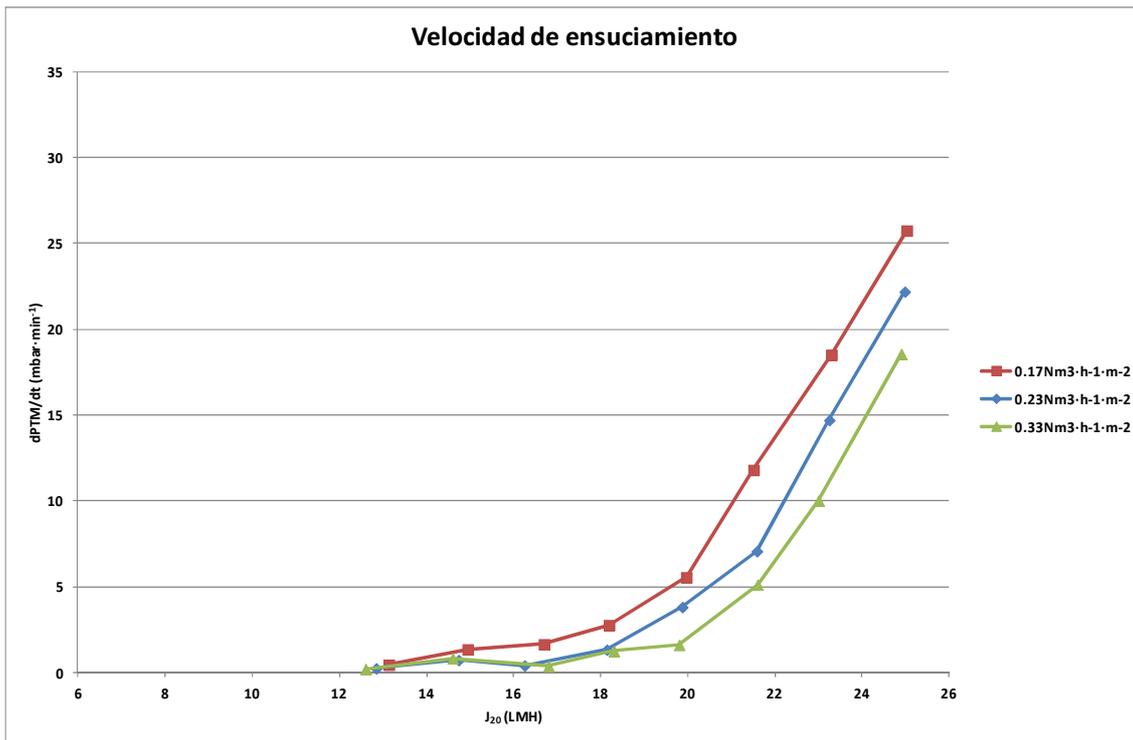


Figura 39: Efecto de  $J_{20}$  sobre la velocidad de ensuciamiento en un ensayo puntual de flujo escalonado con una concentración de sólidos totales de  $11,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  (DEG 0,17, 0,23 y  $0,33 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$ )

Puede observarse en la figura 39 cómo el flujo crítico (el flujo a partir del cual se observa un incremento en la velocidad de ensuciamiento) aumenta al aumentar la demanda específica de gas. Esto concuerda con la idea de que la turbulencia aportada por la recirculación de biogás mejora la homogeneización de la mezcla, disminuyendo el gradiente de concentración entre la superficie de la membrana y el seno del fluido y facilitando además el desprendimiento de la torta que pueda haberse formado. Este comportamiento se repite a concentraciones de sólidos totales de  $18,5$ ,  $22,5$  y  $28,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  (ver figuras 40, 41 y 42, respectivamente).

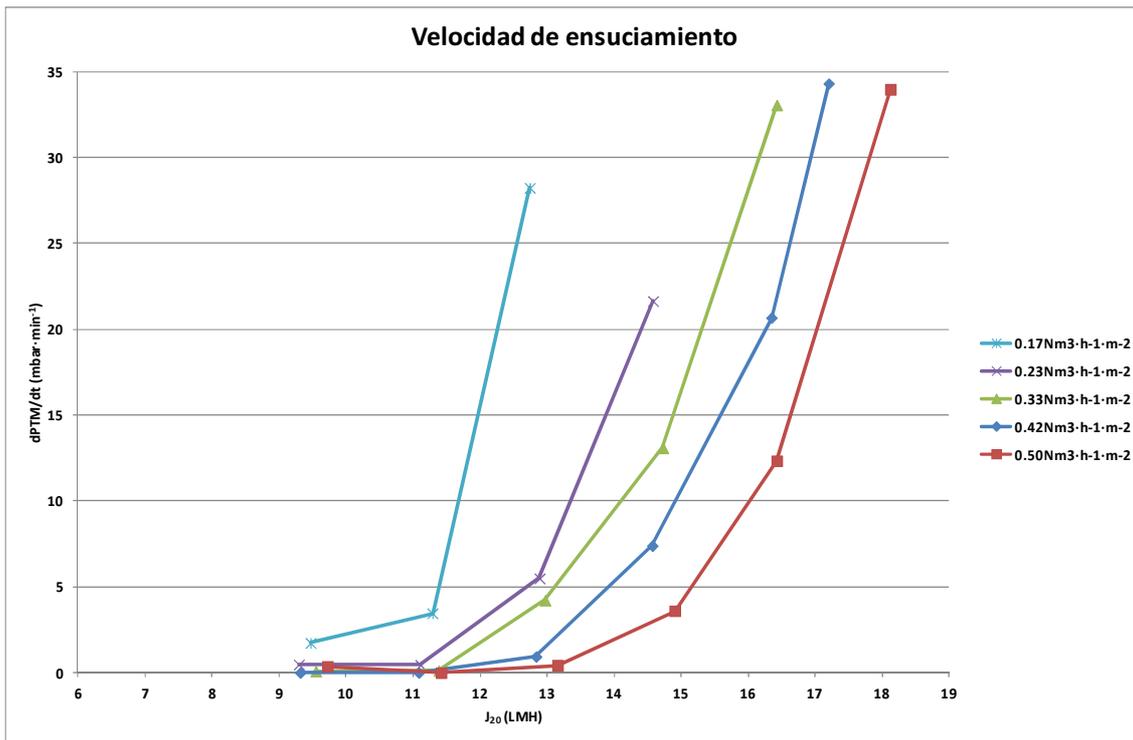


Figura 40: Efecto de  $J_{20}$  sobre la velocidad de ensuciamiento en un ensayo puntual de flujo escalonado con una concentración de sólidos totales de  $18,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  (DEG 0,17, 0,23, 0,33, 0,42 y 0,5  $\text{Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$ )

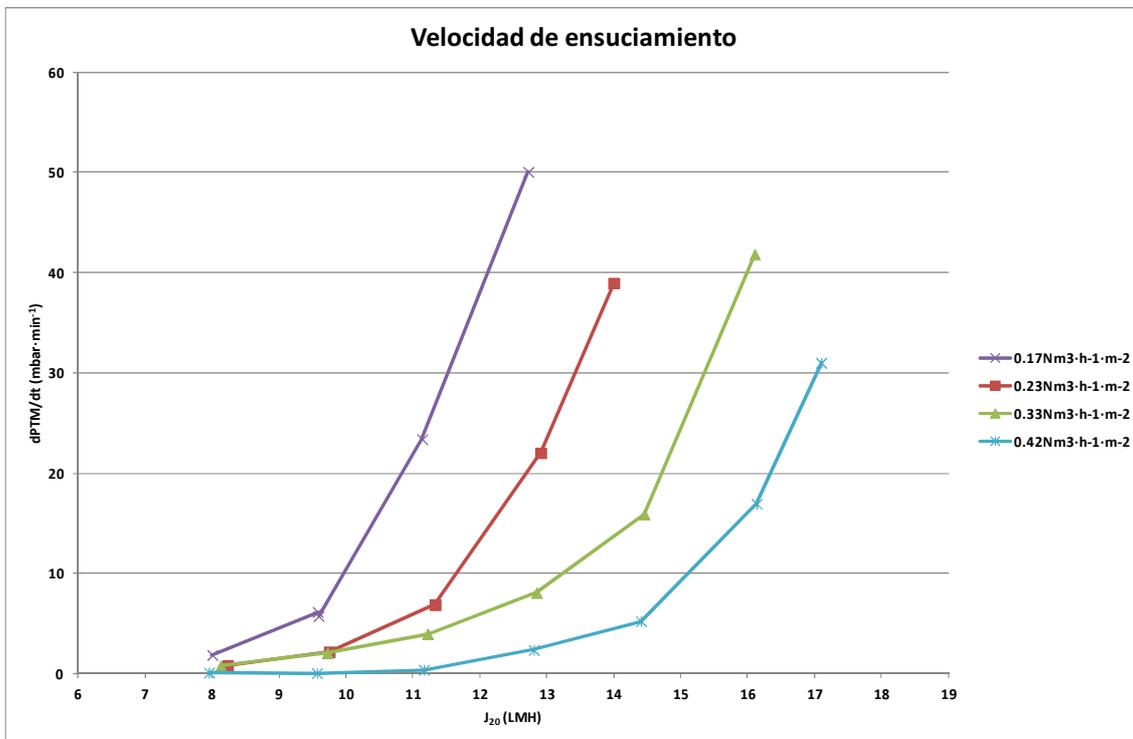


Figura 41: Efecto de  $J_{20}$  sobre la velocidad de ensuciamiento en un ensayo puntual de flujo escalonado con una concentración de sólidos totales de  $22,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  (DEG 0,17, 0,23, 0,33 y 0,42  $\text{Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$ )

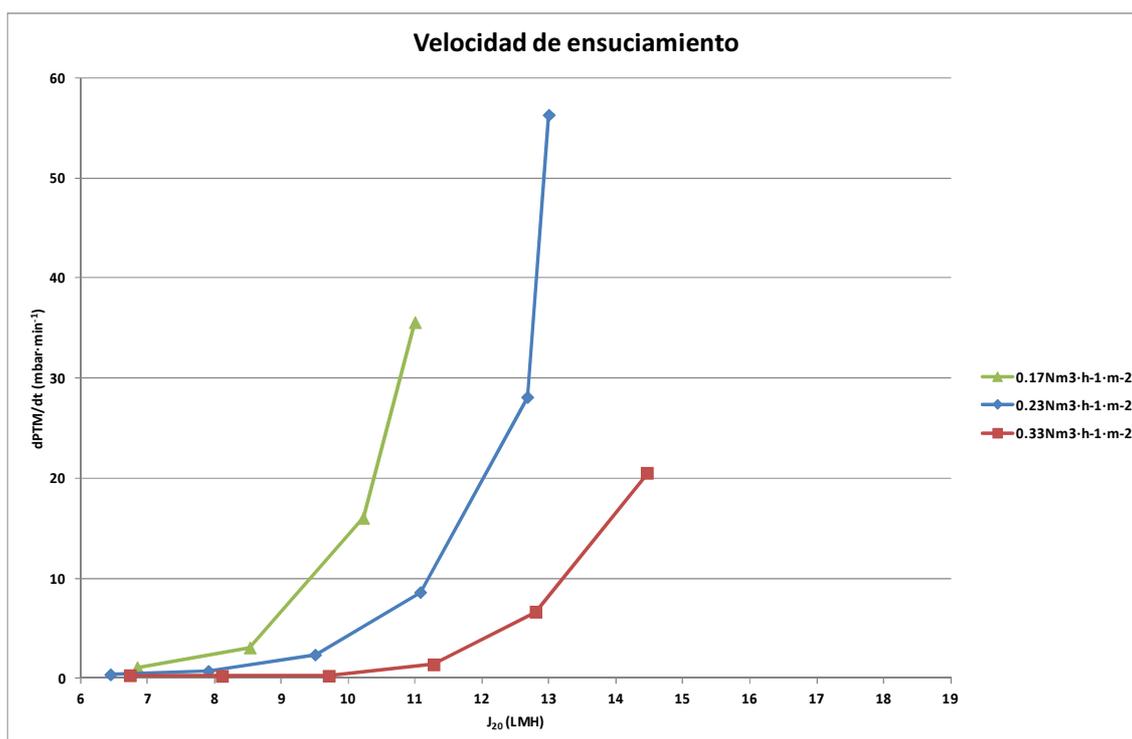


Figura 42: Efecto de  $J_{20}$  sobre la velocidad de ensuciamiento en un ensayo puntual de flujo escalonado con una concentración de sólidos totales de  $28,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  (DEG 0,17, 0,23 y 0,33  $\text{Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$ )

Además, la figura 42 muestra cómo el método de flujo escalonado utilizado en este trabajo predice que se puede operar en régimen subcrítico a concentraciones de sólidos totales tan altas como  $28,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  con DEG bajas ( $0,17 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$ ), siempre y cuando no se sobrepase un flujo de permeado de 8 LMH. Alcanzar flujos mayores supone necesariamente aumentar la DEG si se desea operar en condiciones subcríticas, lo cual pone de manifiesto que las condiciones de operación deben optimizarse para cada caso concreto. Establecer unas buenas condiciones de operación supone un ahorro energético además de prolongar los periodos de operación sin necesidad de paros para limpieza y/o regeneración química de las membranas.

#### 5.1.5. Influencia del caudal de biogás sobre el flujo crítico ( $J_c$ )

La figura 43 muestra la relación entre el flujo crítico determinado a partir del método del flujo escalonado modificado y la DEG para cada una de las condiciones de operación estudiadas.

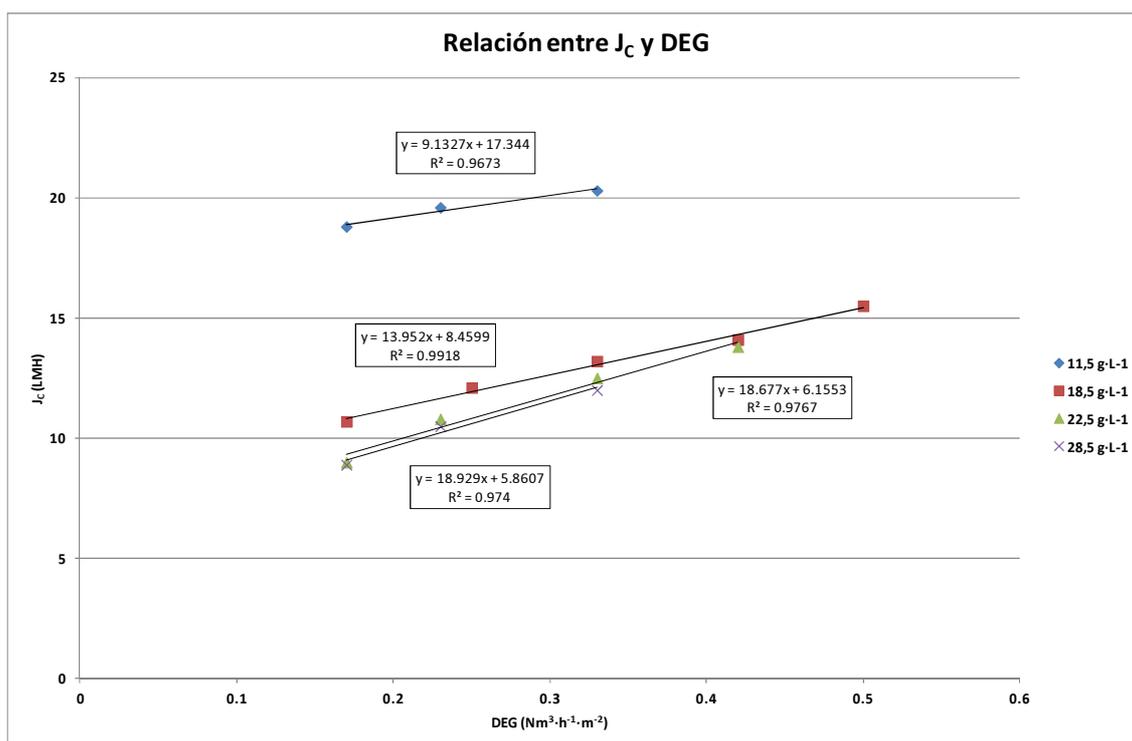


Figura 43: Correlación entre J<sub>c</sub> y la DEG para diferentes valores de sólidos totales (11,5, 18,5, 22,5 y 28,5 g·L<sup>-1</sup>)

Todos los experimentos realizados muestran una correlación lineal entre DEG y J<sub>c</sub> ( $R^2 > 0,96$ ) para el rango de operación estudiado. Los resultados obtenidos muestran cómo es posible operar en condiciones subcríticas a diferentes concentraciones de sólidos y con diferentes valores de la DEG (incluso a valores bajos:  $0,17 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$ ). Por tanto, una correcta selección de los parámetros de operación supondrá un importante ahorro energético y prolongar de la vida útil de las membranas, lo cual aumenta la rentabilidad del proceso, tal y como ya se comentó en el apartado anterior.

La figura 43 muestra también cómo disminuye el flujo crítico a medida que la concentración de sólidos totales aumenta. Además, a mayor DEG mayor es el J<sub>c</sub>, tal y como se ha ido apuntando en los apartados anteriores. También puede apreciarse un salto entre los resultados a  $11,5 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$  y el resto, mientras que los experimentos a  $18,5$ ,  $22,5$  y  $28,5 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$  presentan resultados muy similares. Eso supone que la influencia de la concentración de sólidos totales es mayor entre  $11,5$  y  $18,5 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$  que una vez superado este valor. A partir de  $22,5 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$  el incremento de la concentración de sólidos deja de suponer una disminución en el J<sub>c</sub>, manteniéndose éste aproximadamente constante para un determinado valor de DEG, dentro del rango de estudio. Es decir, la reducción en el J<sub>c</sub> al aumentar la concentración de sólidos tiende a disminuir a medida que se incrementa la concentración de sólidos totales.

Por último, puede apreciarse que a altas DEG los flujos críticos de los experimentos a una concentración de sólidos totales de  $18,5$ ,  $22,5$  y  $28,5 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$  tienden a convergir, mientras

que a bajas DEG (ver puntos con DEG de  $0,17 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$ ) existe una diferencia significativa entre los experimentos a  $18,5$  y  $22,5 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$ . De esta manera, la diferencia entre los  $J_c$  correspondientes a  $18,5$  y  $22,5 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$  y DEG de  $0,17 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$  es de 3 LMH aproximadamente, mientras que a una DEG de  $0,42 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$  esta diferencia es insignificante.

### 5.1.6. Influencia de la concentración de sólidos totales sobre el $J_c$

En la figura 44 puede observarse la relación entre el flujo crítico y la concentración de sólidos totales en el reactor, para tres DEG de  $0,17$ ,  $0,23$  y  $0,33 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$ .

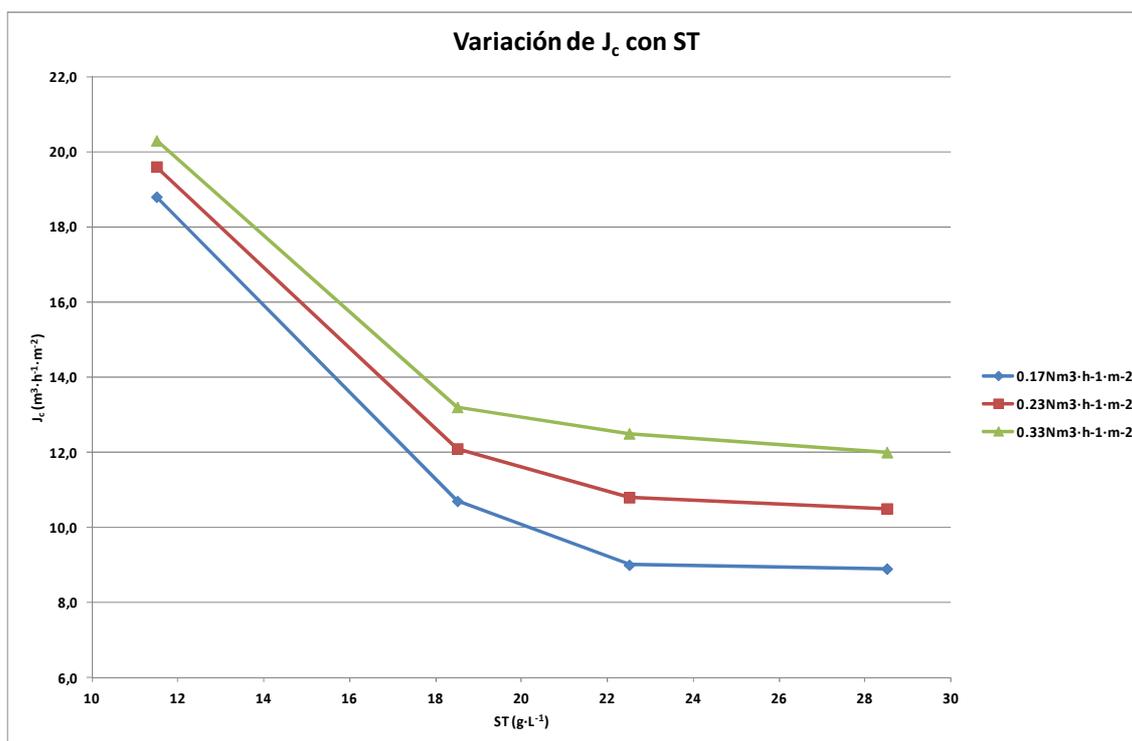


Figura 44: Relación entre  $J_c$  y los sólidos totales (DEG:  $0,17$ ,  $0,23$ ,  $0,33 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$ ).

La figura 44 muestra cómo  $J_c$  disminuye a medida que aumentan la concentración de sólidos totales en el reactor. Tal y como se ha comentado en apartados anteriores, el origen del ensuciamiento proviene de la deposición los sólidos sobre la superficie de la membrana, que generan una torta que dificulta el proceso de filtración y aumenta de esta manera la PTM necesaria para mantener un flujo de permeado dado.

Para una concentración de sólidos totales de  $11,5 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$  y DEG de  $0,17$  a  $0,33 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$ , el flujo crítico se sitúa en el intervalo  $18,5$ - $21$  LMH, mientras que con una concentración de  $28,5 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$  y valores de DEG similares, el flujo crítico disminuye hasta valores en el intervalo  $8,5$ - $12$  LMH aproximadamente. Se observa también que el efecto de la DEG sobre el flujo crítico aumenta al aumentar la concentración de sólidos totales en el reactor. Para una

concentración de  $11,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ , el aumento de la DEG de  $0,17$  a  $0,23 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$  supuso un incremento de  $J_C$  de  $0,8 \text{ LMH}$ , mientras que para  $28,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ , el incremento fue de  $1,6 \text{ LMH}$ . Teniendo en cuenta que a  $11,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ , los valores de  $J_C$  están en torno a los  $20 \text{ LMH}$  y que para  $28,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  se sitúan a la mitad de ese valor, el incremento en el  $J_C$  porcentualmente alcanzado al aumentar la DEG es todavía más significativo. Esto demuestra la importancia que la DEG tiene para minimizar el ensuciamiento de la membrana y por lo tanto minimizar el consumo energético asociado al proceso de filtración.

Otro aspecto a destacar es que para una misma concentración de sólidos totales, el flujo crítico es menor en los experimentos a bajas DEG. Esto se debe a que la turbulencia y esfuerzos cortantes aportados por el biogás es el mecanismo principal por el que la torta generada durante la filtración se desprende, mejorando por tanto el proceso de filtración.

Por último, la evolución del flujo crítico con respecto a la concentración de sólidos totales no es lineal. La figura 44 muestra que las condiciones críticas de filtración alcanzan un punto en el que dejan de estar influenciadas por la concentración de sólidos totales y  $J_C$  deja de disminuir aunque la concentración de sólidos totales aumente, en el rango de valores de DEG estudiados. En estos experimentos, ocurre a partir de una concentración de sólidos totales de  $22,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  aproximadamente.

Los resultados obtenidos en la figura 44 quedaron ya de manifiesto en la figura 43 del apartado anterior. El hecho de que altas concentraciones de sólidos totales dejen de influir en el  $J_C$  podría estar relacionado con cambios en el comportamiento reológico del fango, ya que a bajas concentraciones la viscosidad del fango presenta un comportamiento similar al newtoniano mientras que a concentraciones altas el comportamiento es pseudoplástico (Robles *et al.*, 2012).

#### **5.1.7. Establecimiento de las condiciones críticas de filtración**

La figura 45 resume los resultados obtenidos a partir de los experimentos puntuales realizados, en los que se han variado las condiciones de operación del tanque de membranas modificando la concentración de sólidos suspendido totales ( $11,5$ ,  $18,5$ ,  $22,5$  y  $28,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ ) y la DEG ( $0,17$ ,  $0,23$ ,  $0,33$ ,  $0,42$  y  $0,5 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$ ).

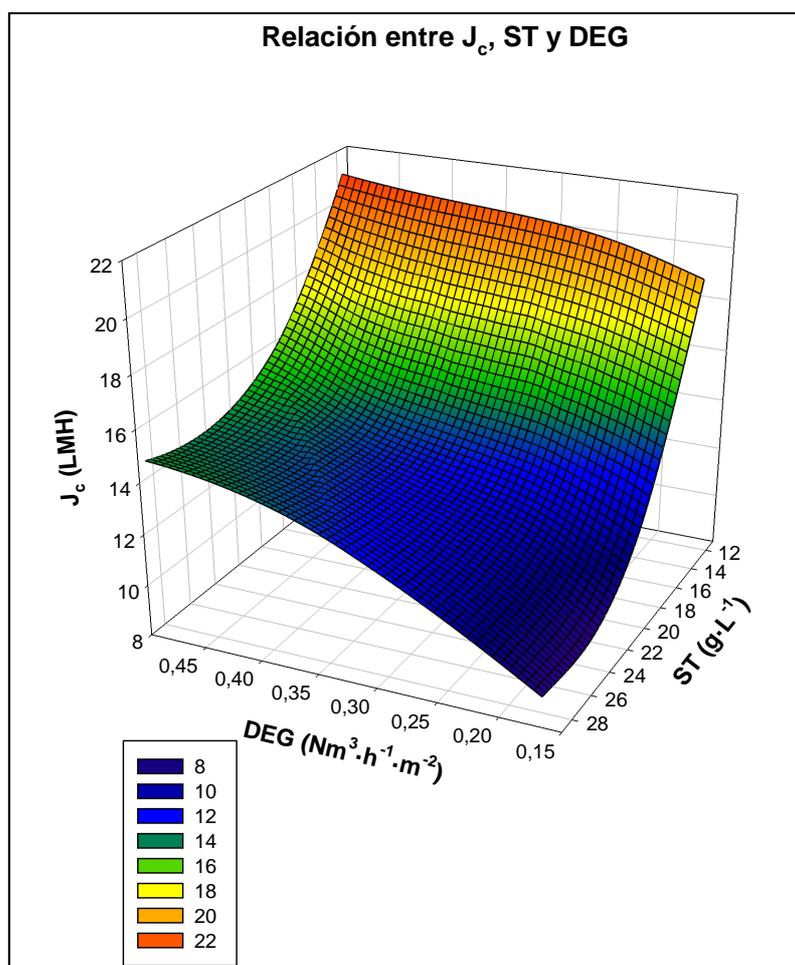
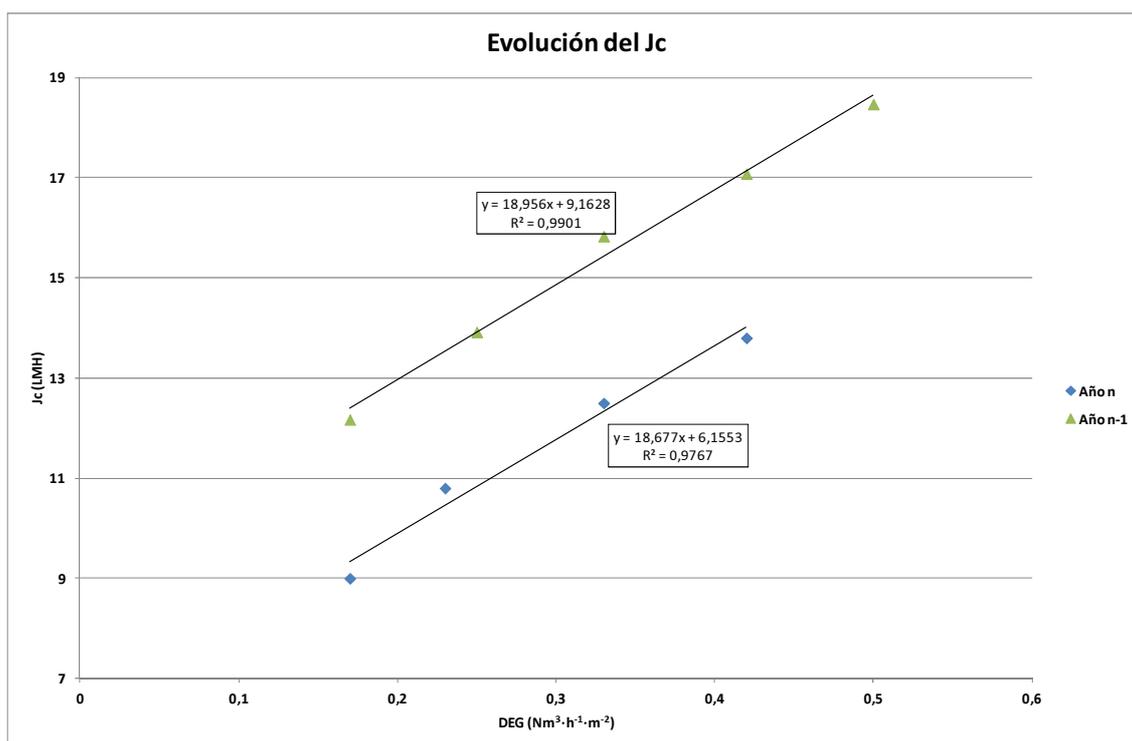


Figura 45: Resumen de los resultados obtenidos de las condiciones críticas de filtración bajo diferentes concentraciones de sólidos totales y DEG.

En esta figura se establece la superficie que delimita la región en la cual se estaría operando bajo régimen subcrítico y, por lo tanto, establece las condiciones bajo las cuales se minimizarían los problemas de ensuciamiento. Un estudio económico posterior del proceso permitiría establecer las condiciones específicas de funcionamiento que minimicen los costes de operación. En este sentido, se debería llegar a un compromiso entre los costes iniciales de inversión relativos a la superficie de membrana necesaria y los costes asociados a la operación de las mismas.

#### 5.1.8. Método del flujo escalonado para la determinación de la componente de ensuciamiento irreversible de las membranas.

La figura 46 muestra la variación de las condiciones críticas de filtración tras un año de operación ininterrumpida de las membranas. Las condiciones de los experimentos fueron las siguientes: sólidos suspendidos totales en el reactor de  $22,5 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$  para el experimento actual (año n) y  $23 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$  para el realizado con un año de antelación (año n-1, ver Robles *et al.*, 2012).



**Figura 46:** Comparación de los flujos críticos obtenidos a una concentración de sólidos totales de 22,5 g·L<sup>-1</sup> (año n), con los resultados obtenidos con un año de antelación a una concentración de sólidos totales de 23 g·L<sup>-1</sup> (año n-1), tras operación ininterrumpida del proceso de filtración.

La figura 46 muestra que el experimento realizado con un año de antelación (año n-1) presenta unos valores de flujo crítico superiores a los del experimento más reciente (año n). Dado que las condiciones son similares, la diferencia se atribuye al desarrollo de un ensuciamiento irreversible que no puede retirarse mediante las estrategias típicas de limpieza mecánica de las membranas (recirculación de gas al tanque de membranas, relajación y contralavado). Puesto que el funcionamiento ha sido ininterrumpido en todo este periodo experimental, puede concluirse que la determinación de las condiciones críticas de filtración permite prolongar la vida útil de las membranas, pero que el método de flujo escalonado modificado resulta en valores de  $J_c$  que no impiden de manera completa la formación de ensuciamiento irreversible y/o irrecuperable.

Por tanto, el método de flujo escalonado modificado utilizado en estos experimentos es capaz de establecer condiciones de flujo que mejoran la productividad del proceso de filtración mediante la minimización de la formación de ensuciamiento irreversible y/o irrecuperable. Sin embargo, la probabilidad de ensuciamiento irreversible y/o irrecuperable no desaparece completamente, por lo que los valores reales de las condiciones críticas de filtración a aplicar para la operación a largo plazo de las membranas deberán ser más conservadores que los aportados por el método.

En cualquier caso, quedaría por establecer si una regeneración química de las membranas permitiría eliminar todo, o al menos parte, de este ensuciamiento irreversible de manera que la membrana recuperase las condiciones iniciales. De este modo se establecería qué fracción del ensuciamiento observado entre los dos experimentos puede ser denominado irrecuperable.

### 5.1.9. Método del flujo escalonado para la determinación de la componente de ensuciamiento irrecuperable de las membranas.

Las figuras 47, 48, 49 y 50 muestran la evolución de la PTM media, la permeabilidad, la resistencia total y la velocidad de ensuciamiento de la membrana en función de  $J$ , para una concentración de sólidos totales de  $14 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ . Los resultados obtenidos corresponden al comportamiento del módulo de membranas tras funcionar ininterrumpidamente durante dos años y medio. En todos los casos, estos resultados serán comparados con los resultados obtenidos en los anteriores ensayos puntuales realizados a DEG comprendidas entre  $0,17$  y  $0,33 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$ .

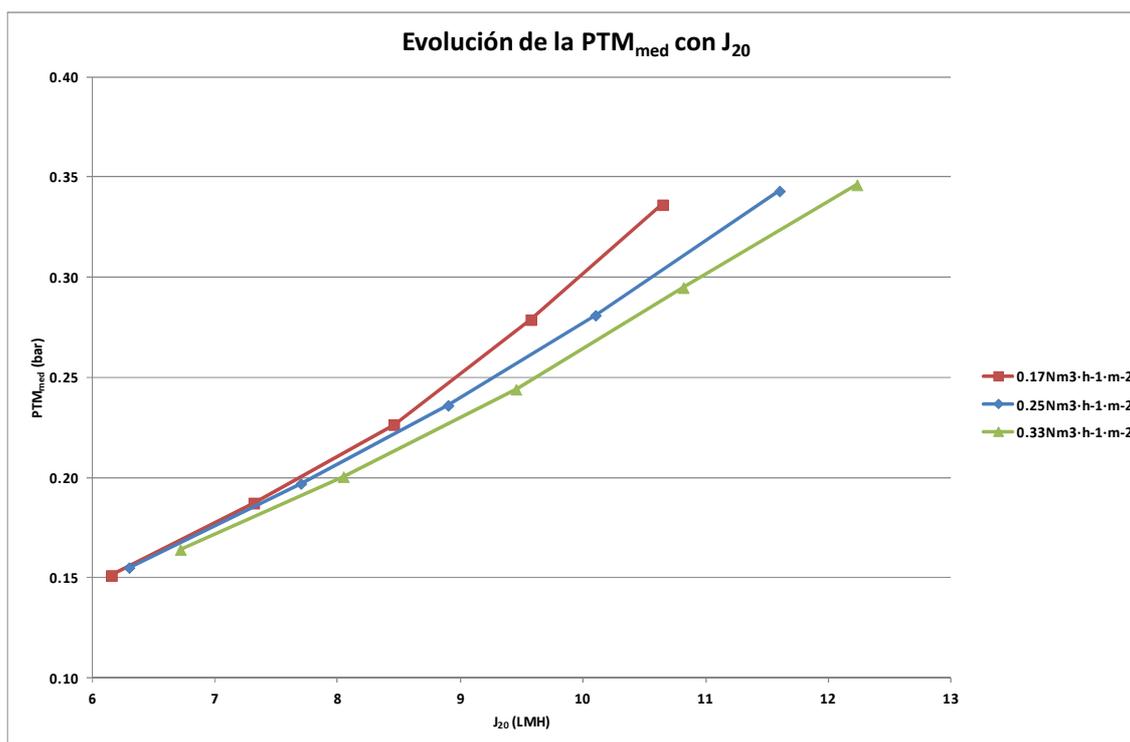


Figura 47: Efecto del  $J_{20}$  sobre la  $PTM_{med}$  en un ensayo puntual de flujo escalonado a una concentración de sólidos totales de  $14 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  tras dos años y medio de funcionamiento ininterrumpido (DEG  $0,17$ ,  $0,25$  y  $0,33 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$ ).

La figura 47 muestra, tal y como ya se ha comentado en apartados anteriores, una relación lineal entre el flujo y la PTM dado que se trata de concentraciones de sólidos totales relativamente bajas. El comportamiento de la serie sigue las pautas que se han definido es

apartados anteriores: a mayores flujos, mayores PTM medias y a mayores DEG menores PTM medias para un mismo valor de flujo de permeado.

Si se observan los valores de PTM media y flujo de la serie correspondiente a una concentración de sólidos totales de  $18,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  de la figura 28, se comprueba que los flujos alcanzados son sensiblemente superiores que los mostrados en la figura 47. En el caso de  $18,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ , los flujos de permeado estaban entre 9,5 y 17 LMH con un intervalo de PTM de 0,1-0,35 bar aproximadamente. Sin embargo en el caso de la figura 47, con una concentración de  $14 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  se alcanzan PTM de aproximadamente 0,35 bar con un flujo entre 10,5 y 12,3 LMH. Es decir, tras seis meses de operación ininterrumpida de las membranas (periodo transcurrido entre los resultados mostrados en las figuras 28 y 47), es posible detectar un incremento en el ensuciamiento irreversible y/o irrecuperable de la membrana. Este ensuciamiento de la membrana se pone de manifiesto puesto que son necesarias PTM mayores para alcanzar los mismos valores de flujo de permeado, a pesar de trabajar a concentraciones de sólidos totales inferiores en el segundo caso.

La figura 48 muestra el comportamiento de la permeabilidad de las membranas antes de la regeneración química.

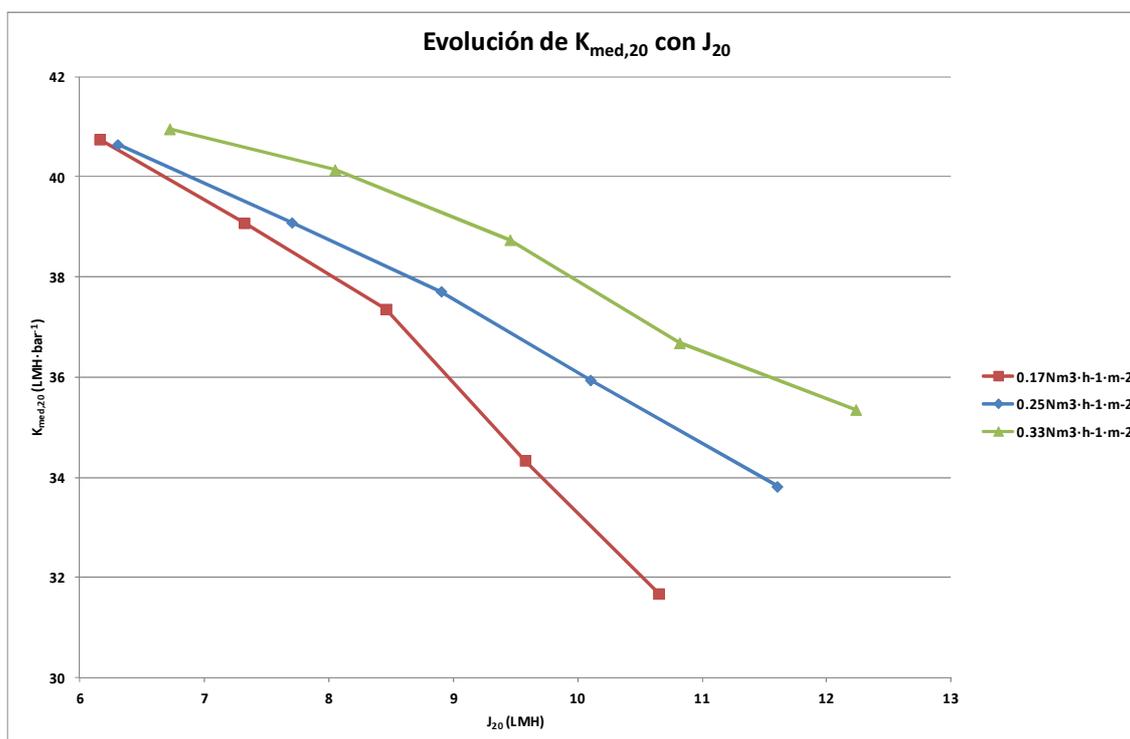


Figura 48: Efecto del  $J_{20}$  sobre la  $K_{med}$  en un ensayo puntual de flujo escalonado a una concentración de sólidos totales de  $14 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  tras dos años y medio de funcionamiento ininterrumpido (DEG 0,17, 0,25 y 0,33  $\text{Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$ ).

El ensuciamiento en las membranas en el periodo entre ambos experimentos es más notorio al comparar las  $K_{med}$ . En la figura 32 pueden observarse los resultados de la permeabilidad para el experimento realizado con seis meses de antelación a una concentración de sólidos totales de  $18,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ . Los valores de  $K_{med}$  se encuentran en un intervalo de  $80\text{-}100 \text{ LMH}\cdot\text{bar}^{-1}$  aproximadamente, para flujos de permeado entre  $9,5$  y  $18 \text{ LMH}$ . Por el contrario, en la figura 48 se observa que las permeabilidades son sensiblemente menores, entre  $31$  y  $41 \text{ LMH}\cdot\text{bar}^{-1}$ , para flujos también menores, entre  $6$  y  $12,5 \text{ LMH}$ . De modo que se hace patente la aparición de un componente de ensuciamiento irreversible y/o irrecuperable que provocó una disminución muy importante en los valores de permeabilidad de la membrana. Es decir, incluso trabajando a flujos inferiores en el segundo caso, la permeabilidad resultante fue considerablemente inferior.

La figura 49 es complementaria a las figuras 47 y 48, y muestra los resultados relativos a la resistencia total. Comparando la figura 49 con la figura 36, correspondiente al experimento a una concentración de sólidos totales de  $18,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ , se observa un incremento de los valores de  $R_T$ . La figura 36 muestra unos valores de  $R_T$  de entre  $3\cdot 10^{12}$  y  $8\cdot 10^{12} \text{ m}^{-1}$  para valores de flujo entre  $9$  y  $16,5 \text{ LMH}$ . En el caso de la figura 49, con una concentración de sólidos totales de  $14 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ , las resistencias totales aumentan considerablemente, quedando en un intervalo entre  $8,7\cdot 10^{12}$  y  $1,14\cdot 10^{13}$ , para unos flujos de permeado entre  $6$  y  $12,5 \text{ LMH}$ .

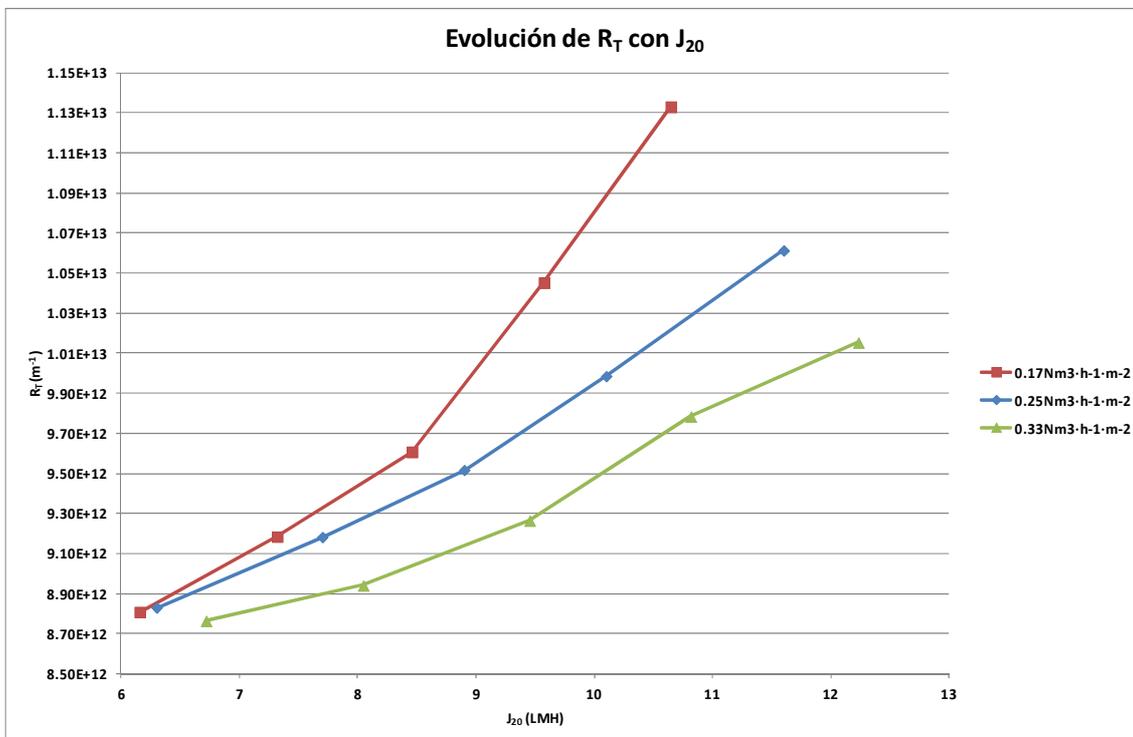


Figura 49: Efecto del  $J_{20}$  sobre la  $R_T$  en un ensayo puntual de flujo escalonado a una concentración de sólidos totales de  $14 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  tras dos años y medio de funcionamiento ininterrumpido ( $\text{DEG } 0,17, 0,25 \text{ y } 0,33 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$ ).

Por lo tanto, a partir de las diferencias observadas entre los experimentos de la figura 36 y 49 puede concluirse que, si bien el método de flujo escalonado utilizado en el presente trabajo puede alargar la vida útil de la membrana, este método no permite determinar aquellas condiciones subcríticas de filtración que permitan anular totalmente la aparición de ensuciamiento irreversible y/o irrecuperable. Tras un periodo más o menos prolongado, se hará necesario interrumpir la filtración para llevar a cabo una limpieza química de la membrana y recuperar por tanto su capacidad de filtración.

La figura 50 muestra la velocidad de ensuciamiento de la membrana para diferentes valores de DEG y a una concentración de sólidos totales de  $14 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ .

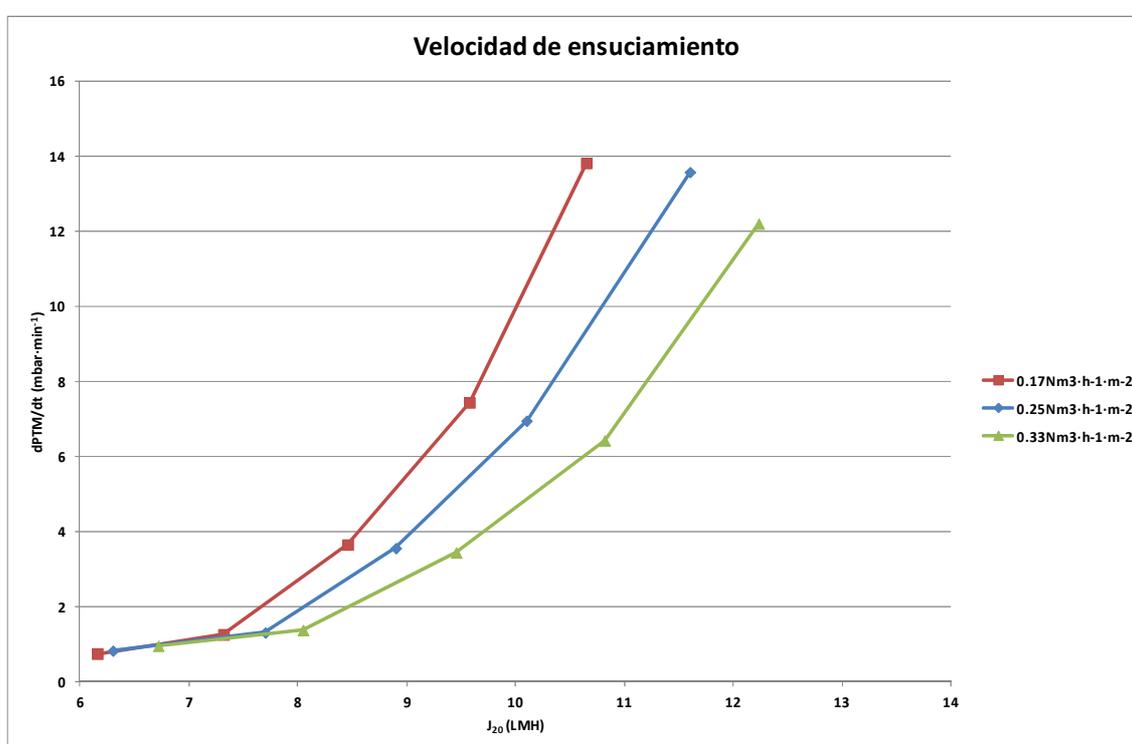


Figura 50: Efecto del  $J_{20}$  sobre la velocidad de ensuciamiento en un ensayo puntual de flujo escalonado a una concentración de sólidos totales de  $14 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  tras dos años y medio de funcionamiento ininterrumpido: (DEG 0,17, 0,25 y  $0,33 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$ )

Esta figura puede compararse con la figura 40, correspondiente a la velocidad de ensuciamiento determinada con seis meses de antelación a una concentración de sólidos totales de  $18,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ . Los resultados de la figura 40 muestran que el flujo correspondiente a una velocidad de ensuciamiento de  $12 \text{ mbar}\cdot\text{min}^{-1}$  correspondía con  $J_{20}$  en el intervalo entre 11,5 y 14,3 LMH aproximadamente, en función de la DEG. En el experimento de la figura 50, para el mismo valor del flujo de permeado, el intervalo en los valores de las velocidades de ensuciamiento está entre 10,3 y  $12,3 \text{ mbar}\cdot\text{min}^{-1}$ . Teniendo en cuenta que la concentración de sólidos totales en el experimento de la figura 40 es de  $18,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  mientras que en la figura 50 es de  $14 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ , es posible concluir que la velocidad de ensuciamiento en el momento actual es

sensiblemente superior, lo cual se traduce en unos valores del flujo crítico inferiores. Es decir, se ha producido ensuciamiento irreversible de la membrana y, por tanto, la superficie que delimita la región en la que las membranas serían operadas bajo condiciones subcríticas se encuentra ahora a  $J_c$  inferiores.

Las figuras 51, 52, 53 y 54 representan la evolución de los mismos parámetros (PTM, permeabilidad, resistencia total y velocidad de ensuciamiento de la membrana en función de  $J$ ) tras haber sometido a las membranas a una regeneración química.

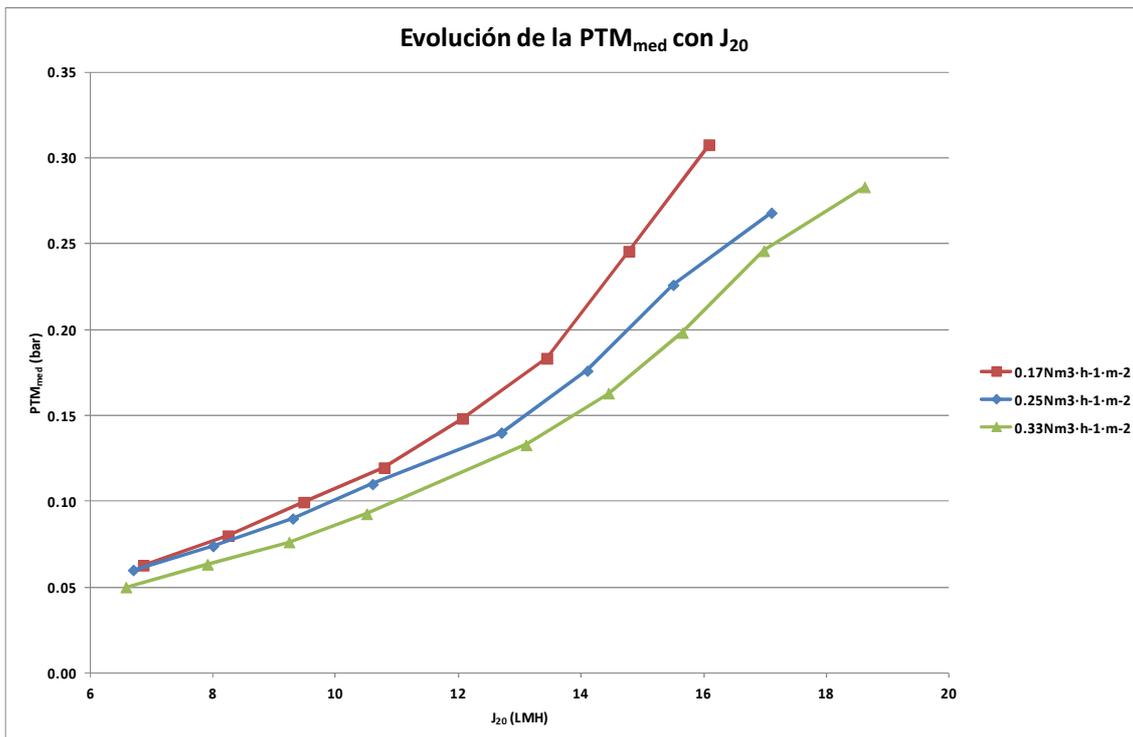


Figura 51: Efecto del  $J_{20}$  sobre la  $PTM_{med}$  en un ensayo puntual de flujo escalonado a una concentración de sólidos totales de  $14 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  tras la regeneración química de la membrana (DEG  $0,17$ ,  $0,25$  y  $0,33 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$ ).

La figura 51 muestra cómo la  $PTM$  media alcanza valores próximos a  $0,30 \text{ bar}$  en un intervalo de flujos entre  $15,8$  y  $18,5 \text{ LMH}$  aproximadamente. Sin embargo, la figura 47 muestra que para valores similares de  $PTM$  los flujos establecidos se situaron en el intervalo  $10$ - $11 \text{ LMH}$ . Es decir, para un mismo valor de fuerza impulsora (gradientes de presiones,  $PTM$ ) se alcanzan mayores valores de flujo de permeado. Esto indica una recuperación de la capacidad de filtración de la membrana tras su regeneración química, por lo que se concluye que se ha eliminado parcialmente la componente de ensuciamiento irreversible que se generó a lo largo del periodo de operación de la membrana.

La figura 52 representa la permeabilidad de la membrana tras la regeneración química.

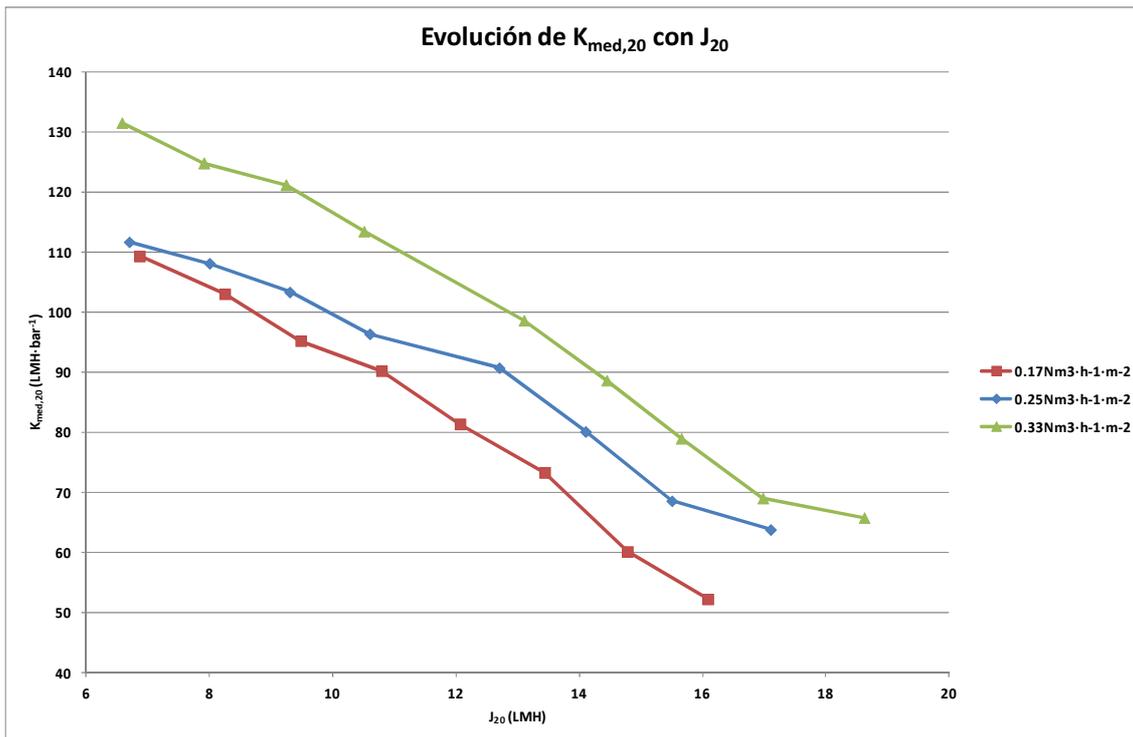


Figura 52: Efecto del  $J_{20}$  sobre la  $K_{med}$  en un ensayo puntual de flujo escalonado a una concentración de sólidos totales de  $14 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  tras la regeneración química de la membrana (DEG  $0,17$ ,  $0,25$  y  $0,33 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$ ).

Comparando la figura 52 con la figura 48 se observa que la permeabilidad de la membrana tras la regeneración se ha recuperado considerablemente, puesto que pasa de estar en un intervalo entre  $41$  y  $31,8 \text{ LMH}\cdot\text{bar}^{-1}$  para flujos entre  $6$  y  $12,5 \text{ LMH}$ , a valores entre  $130$  y  $50 \text{ LMH}\cdot\text{bar}^{-1}$  para flujos entre  $6$  y  $18,5 \text{ LMH}$ , aproximadamente. Por tanto la membrana ha recuperado gran parte de su capacidad de filtración.

La figura 53 representa la resistencia total de la membrana tras la limpieza.

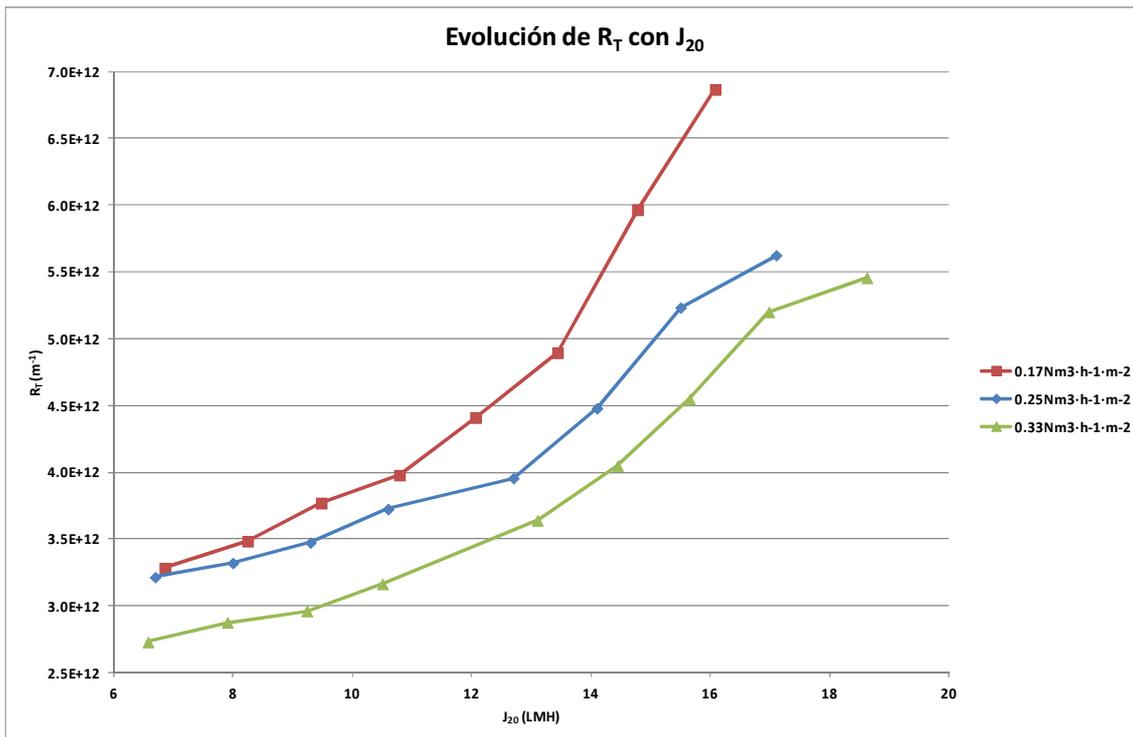


Figura 53: Efecto del  $J_{20}$  sobre la  $R_T$  en un ensayo puntual de flujo escalonado a una concentración de sólidos totales de  $14 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  tras la regeneración química de la membrana ( $\text{DEG } 0,17, 0,25 \text{ y } 0,33 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$ ).

La recuperación de la capacidad de filtración de la membrana se corrobora con la figura 53, la cual muestra una considerablemente inferior resistencia al flujo que la obtenida con anterioridad a la regeneración química (ver figura 49). En este sentido, la  $R_T$  se recupera desde valores en torno a  $8,7\cdot 10^{12}$  y  $1,13\cdot 10^{13} \text{ m}^{-1}$  (ver figura 49) hasta valores en torno a  $2,7\cdot 10^{12}$  y  $7\cdot 10^{12} \text{ m}^{-1}$  (ver figura 53) operando a  $J_{20}$  y DEG similares.

Si en la figura 49, correspondiente a la resistencia total de la membrana antes de la limpieza, podían verse valores para  $R_T$  entre  $8,7\cdot 10^{12}$  y  $1,13\cdot 10^{13} \text{ m}^{-1}$  para un intervalo de flujo entre 6 y 12,5 LMH aproximadamente, tras la limpieza la  $R_T$  cae hasta valores entre  $2,7\cdot 10^{12}$  y  $7\cdot 10^{12} \text{ m}^{-1}$  con un flujo de permeado entre 6,5 y 18,5. Es decir, la resistencia total ha disminuido considerablemente debido a la reducción de la aportación de la resistencia irreversible.

La figura 54 representa la velocidad de ensuciamiento de la membrana tras la regeneración química.

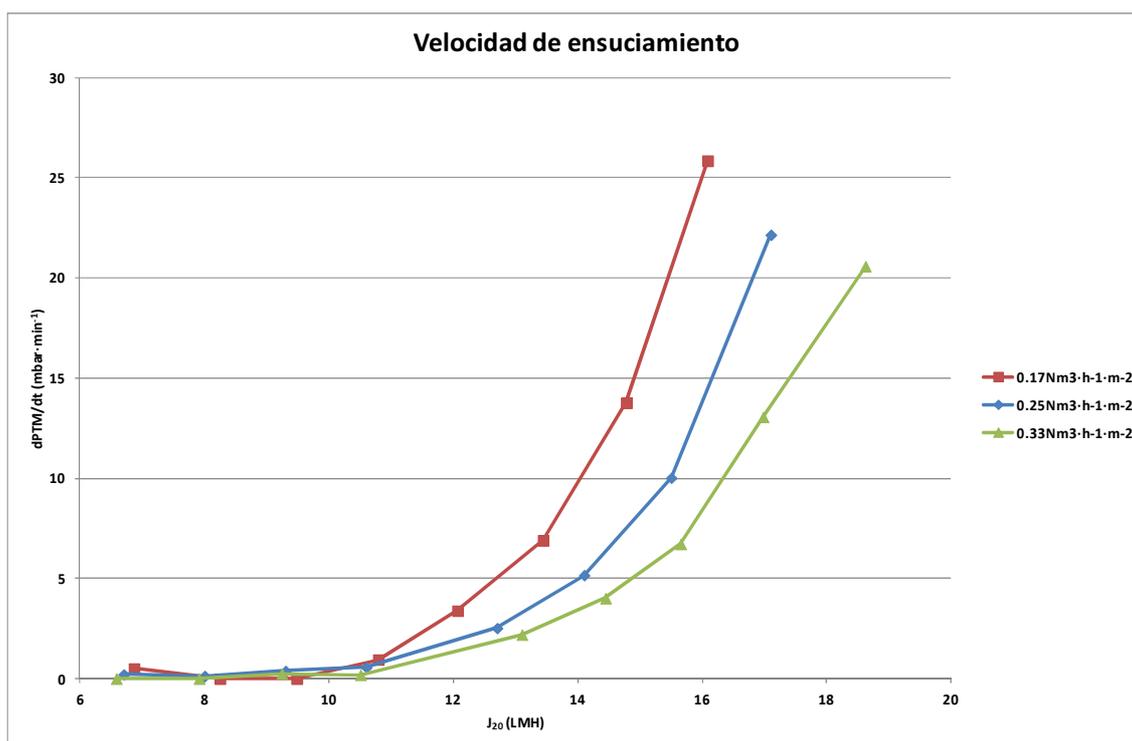


Figura 54: Efecto del  $J_{20}$  sobre la velocidad de ensuciamiento en un ensayo puntual de flujo escalonado a una concentración de sólidos totales de  $14 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  tras la regeneración química de la membrana (DEG 0,17, 0,25 y 0,33  $\text{Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$ ).

Comparando la figura 50, que muestra la velocidad de ensuciamiento antes de la regeneración química, con la figura 54, que muestra la velocidad de ensuciamiento tras la regeneración química, puede comprobarse que para una velocidad de ensuciamiento de  $12 \text{ mbar}\cdot\text{min}^{-1}$ , el flujo resultante era de entre 10,5 y 12 LMH antes de la regeneración química, mientras que este parámetro resultó en valores entre 14,5 y 17 LMH, aproximadamente, tras llevar a cabo la regeneración. Por tanto, como se ha mencionado anteriormente, se observa una eliminación total o parcial del ensuciamiento irreversible de la membrana.

Para finalizar este apartado, se muestra la figura 55, que recoge los valores de los flujos críticos obtenidos antes y después de la regeneración química de la membrana.

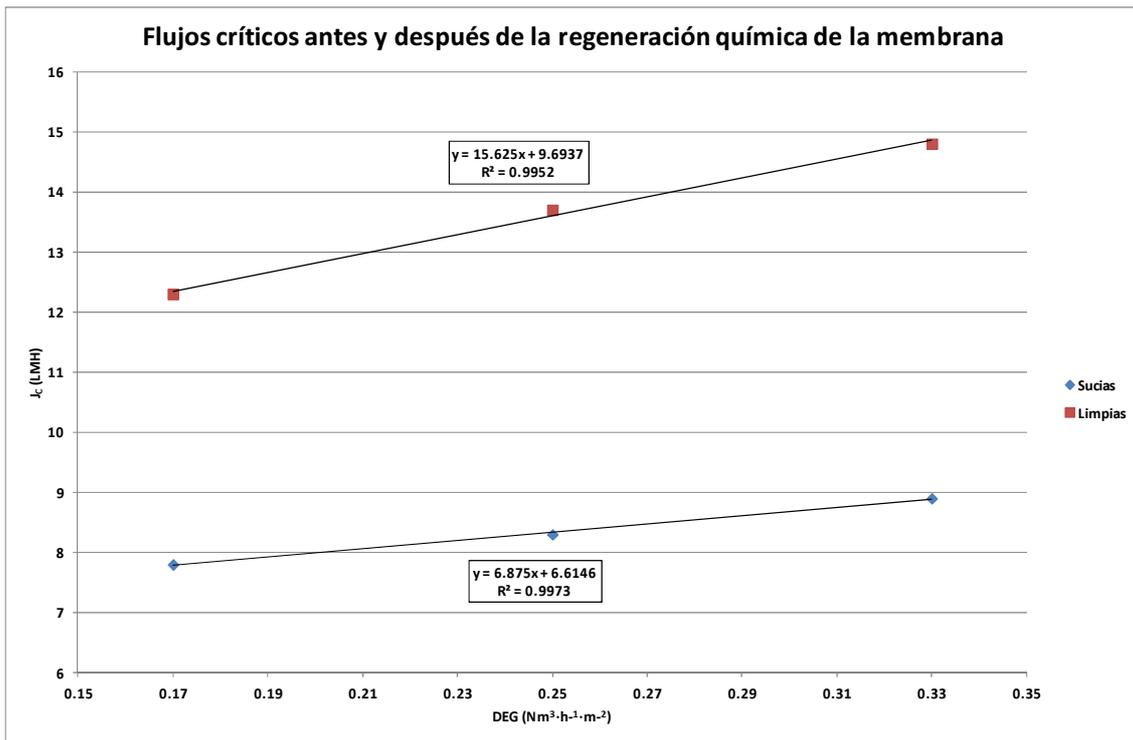


Figura 55: Flujos críticos obtenidos para las membranas tras dos años y medio de funcionamiento ininterrumpido antes y después de someterlas a una regeneración química.

Esta figura muestra claramente cómo han aumentado los flujos críticos tras la regeneración química de las membranas, lo que se traduce en una mayor rentabilidad del proceso de filtrado. En la tabla 7 pueden observarse los valores de flujo crítico establecidos antes y después de la limpieza de las membranas. Esta tabla muestra cómo se incrementó en un 63% de media, lo cual indica que la resistencia irreversible que se había generado había alcanzado valores considerablemente elevados. Cabe destacar que mayores valores de resistencia a la filtración se traducen de forma directa en mayores costes asociados al proceso de bombeo de permeado, siendo el coste energético uno de los factores de operación clave para evaluar la sostenibilidad de un sistema SAnMBR a escala industrial.

Antes de la regeneración		Después de la regeneración		Incremento
Jc (LMH)	DEG (Nm <sup>3</sup> ·h <sup>-1</sup> ·m <sup>-2</sup> )	Jc (LMH)	DEG (Nm <sup>3</sup> ·h <sup>-1</sup> ·m <sup>-2</sup> )	%
7.8	0.17	12.3	0.17	58
8.3	0.25	13.7	0.25	65
8.9	0.33	14.8	0.33	66
			<b>Media</b>	63

Tabla 7: Flujos críticos obtenidos antes y después de la regeneración química de la membrana.

De los valores obtenidos en estos experimentos también es posible deducir que el incremento en el flujo crítico que se alcanza tras la regeneración química es mayor en los experimentos a DEG altas. Este comportamiento sería un indicador de la importancia relativa

entre las resistencias de la membrana, reversible, irreversible e irrecuperable. En los experimentos realizados con las membranas antes de su regeneración, la existencia de la resistencia irreversible y la irrecuperable junto con la de la membrana suponía que el aumento en la DEG generase un leve incremento en los valores de  $J_c$ , debido a la disminución en los valores de la resistencia reversible. Por el contrario, tras la regeneración química la aportación de la resistencia irreversible desaparece, de manera que el aumento en la DEG para minimizar la aportación del ensuciamiento reversible en última instancia dejaría como únicas resistencias significativas al flujo las correspondientes a la membrana y la irrecuperable. Esta diferencia en las aportaciones de las resistencias es la que explicaría que los incrementos de  $J_c$  a DEG altas sean mayores que a bajas DEG.

Los resultados de estos experimentos demuestran, una vez más, que una correcta estrategia de operación encaminada a la minimización de la formación de ensuciamiento irreversible e irrecuperable, estaría justificada, puesto que permitirían alargar la vida útil de las membranas y los periodos entre operaciones de regeneración, lo cual podría compensar operar a menores flujos de permeado.

## 5.2. Revisión bibliográfica de resultados en la determinación de flujos críticos.

La tabla 7 muestra los valores de flujo crítico obtenidos bajo diferentes condiciones recogidos en la bibliografía.

Membrana (Tipo)	Tamaño poro ( $\mu\text{m}$ )	Influyente (Tipo)	BRM (Tipo)	STLM ( $\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ )	$J_{c,20}$ (LMH)	$U_G$ ( $\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$ )	Q(A/G) ( $\text{Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}$ )	DE(A/G) ( $\text{Nm}^3\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ )	Referencia
P	0.22	Sintético	UASB	0.3 - 0.55	30 - 50	--	--	--	Cho <i>et al.</i> , 2002
P	0.4	Sintético	Aerobio	20	44835	25 - 200	--	--	Howell <i>et al.</i> , 2004
P	0.4	Municipal	Aerobio	8	17.5	--	1.5	8.6	Wu <i>et al.</i> , 2008
P	0.8	Municipal	Aerobio	8	29.5	--	1.5	8.6	Wu <i>et al.</i> , 2008
P	0.2	Municipal	Aerobio	8	41.5	--	1.5	8.6	Wu <i>et al.</i> , 2008
P	0.45	Sintético	Aerobio	10	25	300 - 600	--	--	Guo <i>et al.</i> , 2008
P	0.37	Municipal	Aerobio	14	5	--	0.18	--	Bottino <i>et al.</i> , 2009
P	0.1	Municipal	Aerobio	10	50	--	0.4	--	van der Marel <i>et al.</i> , 2009
Tubular	0.2	Sintético	Aerobio	3	10	--	0.36	1.9	Le-Clech <i>et al.</i> , 2003
Tubular	0.2	Municipal	Aerobio	3	10	--	0.36	1.9	Le-Clech <i>et al.</i> , 2003
Tubular	0.2	Sintético	Anaerobio	25	16 - 22	97 - 195	--	--	Guglielmi <i>et al.</i> , 2006
Tubular	0.2	Sintético	Anaerobio	35	41063	55 - 195	--	--	Jeison <i>et al.</i> , 2007
FH	0.1	Domestico	Aerobio	43800	19	--	--	--	Guglielmi <i>et al.</i> , 2002
FH	0.4	Domestico	Aerobio	43374	20	--	--	--	Guglielmi <i>et al.</i> , 2002
FH	0.04	Municipal	Aerobio	10	25 - 31	--	20.9 - 69.6	0.3 - 1.0	Stephenson <i>et al.</i> , 2000
FH	0.04	Municipal	Aerobio	10	28	--	37.8	0.35	Guglielmi <i>et al.</i> , 2007
FH	0.05	Municipal	Anaerobio	23	43800	50 - 160	42125	0.17 - 0.5	Robles <i>et al.</i> 2012
FH	0.05	Municipal	Anaerobio	11.5 - 28.5	8.5 - 25	50 - 160	42125	0.17 - 0.5	Este TFM

Tabla 7: Comparación de ensayos realizados para la determinación de las condiciones críticas de filtración (P: membrana plana; FH: fibra hueca;  $U_G$ : velocidad ascensional de gas o aire; Q(A/G): caudal de aire/gas; DE(G/A): demanda específica de gas/aire por  $\text{m}^2$  de membrana).

Puede hacerse una primera comparación con los resultados de Guglielmi *et al.* (2006) y Jeison *et al.* (2007). En ambos casos se trata de biorreactores de membrana anaerobios, aunque el agua residual es sintética, mientras que la usada en este trabajo es agua residual urbana. Los resultados de Guglielmi *et al.* (2006) se obtuvieron con una concentración de sólidos totales de  $25 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  y una velocidad ascensional de gas en el intervalo 97-195 mm/s. Bajo estas circunstancias, el flujo crítico resultó entre 16 y 22 LMH. En el caso de Jeison *et al.* (2007), con una concentración de sólidos mayor,  $35 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ , y unas velocidades ascensionales de gas entre  $55$  y  $195 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$  se obtuvo un flujo crítico entre 3 y 6 LMH. En este trabajo, el flujo crítico obtenido a  $22,5$  y  $28,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ , los valores más similares a los de los anteriores autores, se sitúa en el intervalo de 8,5-12,5 LMH para una velocidad ascensional de gas de 50-160 LMH. Por lo tanto, el flujo crítico es menor que el obtenido por Guglielmi *et al.* (2006) y mayor que el de Jeison *et al.* (2007). Esto concuerda con la importancia que la concentración de sólidos totales tiene a la hora de establecer las condiciones críticas de filtración. En cualquier caso, dadas las diferencias en las características de las membranas, no es posible establecer una comparación directa.

En cuanto a los experimentos aerobios, los resultados expuestos en Stephenson *et al.* (2000) y Guglielmi *et al.* (2007) muestran una gran concordancia entre ellos. Los resultados en los experimentos aerobios establecen un intervalo para  $J_C$  entre 25 y 31 LMH para una concentración de sólidos suspendidos de  $10 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ . En este trabajo se obtuvo para una concentración de sólidos de  $11,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  un intervalo de  $J_C$  entre 18,5 y 20,5 LMH, algo menores, pero debe tenerse en cuenta que el caudal de gas utilizado en los experimentos aerobios fue superior. De modo que sería de esperar que en el caso de haber utilizado caudales mayores los flujos críticos hubiesen sido al menos similares.

En cualquier caso, es importante resaltar que los resultados presentes en la tabla 7, salvo los correspondientes a Robles *et al.* (2012) y este trabajo, fueron obtenidos con membranas de escala de laboratorio y no pueden ser directamente extrapolados a escala de planta real, dado que el efecto de la turbulencia aportada por el caudal de gas sobre la membrana y el ensuciamiento tiene una gran dependencia de la longitud de la propia membrana y la hidrodinámica dentro del tanque.

Por lo tanto, los resultados obtenidos en este trabajo predicen que es teóricamente posible operar bajo condiciones subcríticas de filtración con valores competitivos de  $J$  (superiores a 10 LMH), sin aplicar valores prohibitivos de DEG (alrededor de  $0,23 \text{ Nm}^3\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ ), y con concentraciones de sólidos totales en el licor mezcla considerablemente elevadas (hasta aproximadamente  $25 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ ). Como se ha mencionado anteriormente, estos resultados confirman la necesidad de optimizar el proceso de filtración en cada rango de operación con el objetivo de minimizar el coste energético en sistemas SAnMBR.

### 5.3. Evolución del comportamiento de la membrana a largo plazo

En las figura 56, 57, 58 y 59 pueden observarse los resultados obtenidos en la planta piloto a lo largo de 810 días de operación ininterrumpida. Los resultados mostrados en los apartados del 5.1.1 al 5.1.7 fueron obtenidos en el periodo vi; los experimentos mostrados en el apartado 2.1.8 (correspondientes a los resultados obtenidos con un año de antelación) fueron obtenidos en el periodo iii; mientras que los experimentos correspondientes al apartado 2.1.9 (correspondientes a los resultados obtenidos antes y después de la regeneración química de las membranas) fueron obtenidos en los periodos viii y ix.

La figura 56 muestra la evolución de los valores medios diarios de  $R_T$  y de la concentración de sólidos totales en el licor mezcla a lo largo del periodo de operación de la planta piloto. La compartimentación de la figura en nueve periodos experimentales (i-ix) se debe a que las condiciones de operación en cada uno de ellos difieren del resto en cuanto a flujo de permeado normalizado a 20°C ( $J_{20}$ ) y a temperatura.

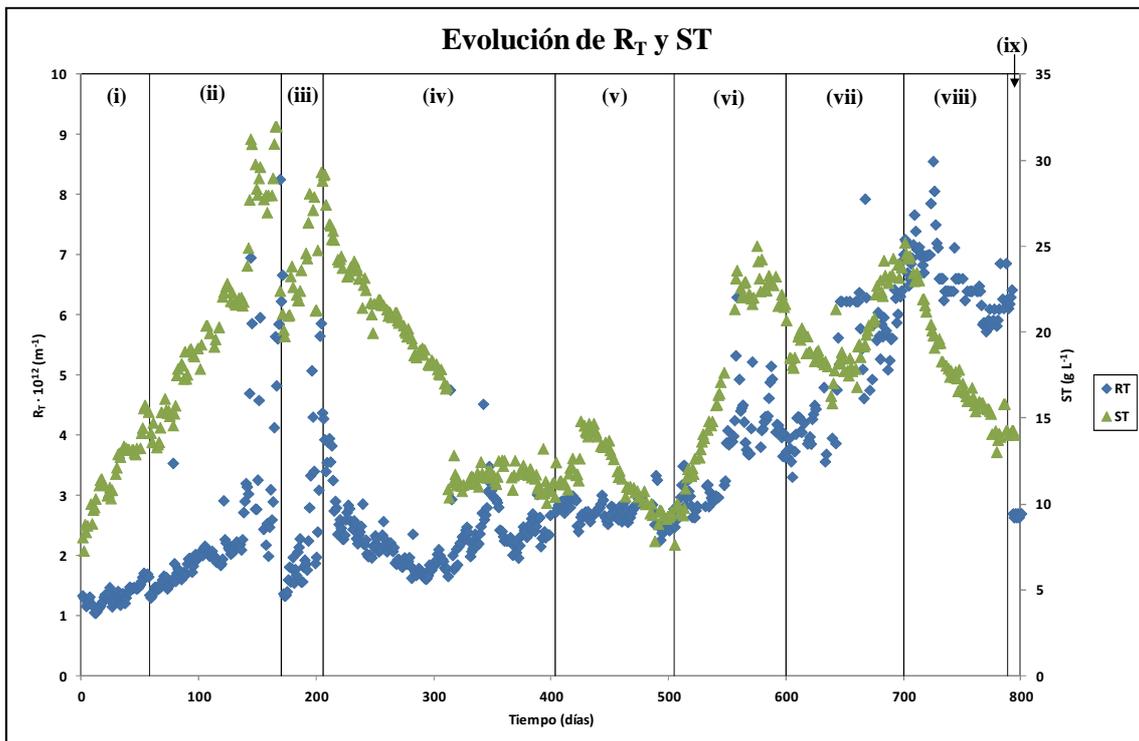


Figura 56: Resultado de la operación a largo plazo: evolución de  $R_T$  y ST. (Periodos experimentales: (i)  $J_{20}=13,3$  LMH y  $T=33^\circ\text{C}$ ; (ii)  $J_{20}=10$  LMH y  $T=33^\circ\text{C}$ ; (iii)  $J_{20}=12$  LMH y  $T=25^\circ\text{C}$ ; (iv)  $J_{20}=13,3$  LMH y  $T=20^\circ\text{C}$ ; (v)  $J_{20}=11$  LMH y  $T_{\text{Ambiente}}$  (de 20 a 30°C); (vi)  $J_{20}=9$  LMH y  $T_{\text{Ambiente}}$  (de 30-15°C); (vii)  $J_{20}=9$  LMH y  $T_{\text{Ambiente}}$  (15-20°C); (viii)  $J_{20}=9$  LMH y  $T_{\text{Ambiente}}$  (20-25°C); (ix)  $J_{20}=11,5$  LMH y  $T=27^\circ\text{C}$ ).

En la figura 56 puede observarse que, entre los días 1 y 130, aproximadamente, se produjo un incremento constante en la concentración de sólidos totales presentes en el reactor, creciendo de  $8 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  hasta  $25 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ . En este periodo de tiempo se produjo a su vez un aumento constante y proporcional de la  $R_T$ , que aumentó desde el valor inicial de  $1,4\cdot 10^{12} \text{ m}^{-1}$  hasta  $2\cdot 10^{12} \text{ m}^{-1}$ . Es decir, el aumento experimentado por la resistencia fue pequeño mientras los sólidos se encontraron por debajo de  $25 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ . A partir del día 130 hasta el 170, la concentración de sólidos totales se mantuvo por encima de este umbral de  $25 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  y la  $R_T$  experimentó un rápido incremento alcanzando valores de hasta  $7\cdot 10^{12} \text{ m}^{-1}$ .

Entre los días 170 y 210, en el periodo iii, puede observarse que al reducirse la concentración de sólidos de  $25$  a  $20 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ , la  $R_T$  volvió a situarse en valores de entre  $1\cdot 10^{12}$  y  $1,5\cdot 10^{12} \text{ m}^{-1}$ . Posteriormente la resistencia total volvió a sufrir un incremento brusco en el momento que se sobrepasaron los  $25 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  de concentración de sólidos totales.

En la primera mitad del periodo iv hubo una bajada constante de la concentración de sólidos totales, que disminuyó de  $25 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  a  $17 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ . Como consecuencia de esto, la  $R_T$  volvió a bajar. Sin embargo, su valor se quedó en torno a  $2\cdot 10^{12} \text{ m}^{-1}$ . Esto indica un posible ensuciamiento irreversible que no puede ser eliminado en las etapas de relajación mediante el arrastre ocasionado por la DEG, ni en las etapas de contralavado. Por lo tanto, las condiciones de resistencia total presentes en la etapa i ya no se alcanzaron nuevamente.

En la segunda mitad del periodo iv y en el v la concentración de sólidos totales se mantuvo en valores relativamente bajos, entre  $10$  y  $15 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ , sin embargo la  $R_T$  continuó incrementándose paulatinamente hasta  $3\cdot 10^{12} \text{ m}^{-1}$ .

En el periodo vi se puede observar cómo el salto en la  $R_T$  no se da en valores de concentración de sólidos totales en torno a  $25 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ , como ocurría en los periodos i, ii y iii, sino que a  $20 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  ya se produce un aumento significativo en la resistencia total.

El periodo vii muestra un incremento constante de la resistencia total independientemente de la disminución inicial y el posterior incremento de la concentración de sólidos suspendidos totales.

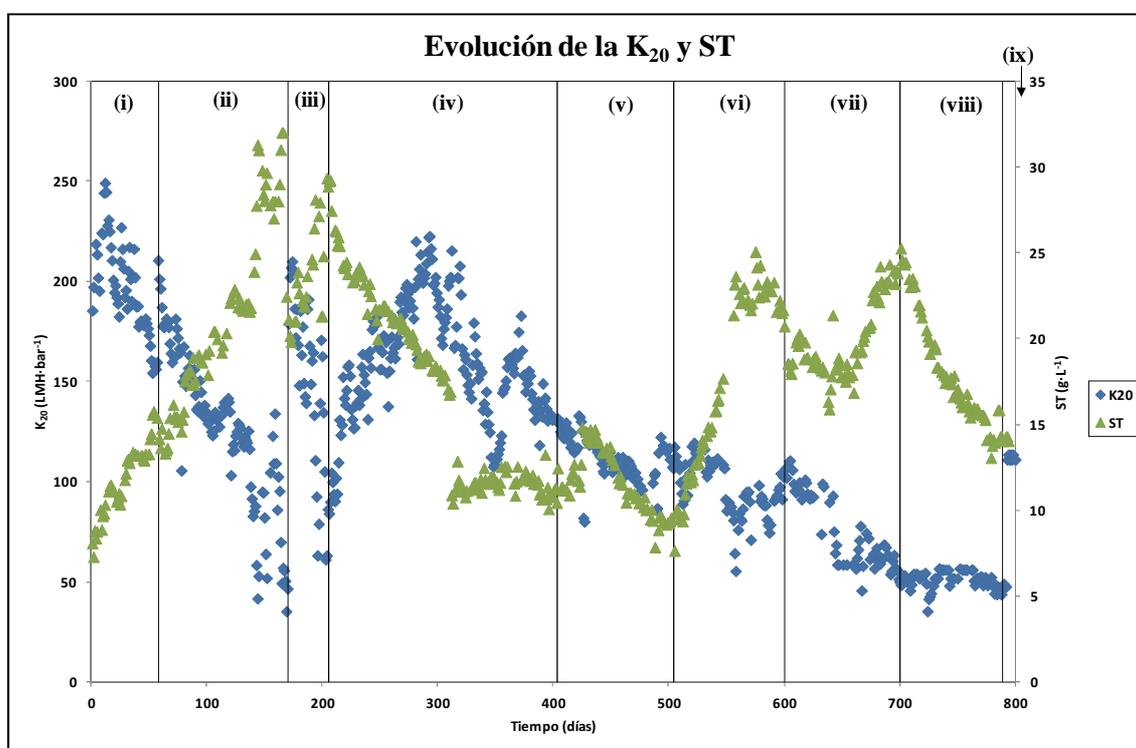
Durante el periodo viii se produjo una disminución de la concentración de sólidos suspendidos totales de  $25$  a  $14 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  que sí generó a su vez una disminución en la resistencia total, pero se mantuvo en valores altos, entre  $6\cdot 10^{12}$  y  $7\cdot 10^{12} \text{ m}^{-1}$ . Únicamente la regeneración química que marca la frontera entre los periodos viii y ix fue capaz de disminuir la resistencia total a valores de  $2,5\cdot 10^{12} \text{ m}^{-1}$ .

Teniendo en cuenta las resistencias parciales que componen la resistencia total, es posible hacer los siguientes comentarios:

- Resistencia de la membrana ( $R_M$ ): dado que no hay modificación en la composición y configuración de la membrana a lo largo del periodo estudiado y la filtración se produce a presiones bajas que no afectan ni a su grosor ni forma, se puede considerar este término constante.
- Resistencia irreversible ( $R_I$ ): en la figura se aprecia que en los primeros periodos (i, ii y iii), en el momento que la concentración de sólidos totales baja de  $25 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ , la resistencia total vuelve a los valores originales, de manera que no se observa la formación de ensuciamiento irreversible y su resistencia asociada se puede considerar despreciable. Esto efecto no se observa a partir del periodo iv, puesto que  $R_T$  no se recupera a valores anteriores (periodos i-iii). Por lo tanto, los intervalos en los que se ha estado operando por encima de las condiciones críticas han generado una resistencia asociada al ensuciamiento irreversible que a partir de ese momento no deja de aumentar.
- Resistencia de la torta ( $R_C$ ): en los primeros tres periodos, puesto que  $R_M$  es constante y  $R_I$  despreciable, las variaciones de  $R_T$  se asocian a la resistencia aportada por la torta de sólidos depositada sobre la superficie de la membrana. El mecanismo de formación de esta torta se basa en dos componentes: el primero consiste en la aparición de la torta debido al depósito de los sólidos sobre la membrana durante el proceso de filtración; el segundo se trata de la eliminación de la torta gracias a la turbulencia y esfuerzos cortantes aportados por el caudal de biogás que se introduce en el reactor (medido como DEG). Por lo tanto, una vez sobrepasado el valor de  $25 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  para la concentración de sólidos totales, la DEG establecida en la operación de la planta no fue capaz de contrarrestar la formación de la torta durante el proceso de filtración, de manera que  $R_T$  experimentó un aumento brusco de su valor, fundamentalmente debido al aumento de  $R_C$ . Esto indica que la elección de la DEG es una estrategia clave a la hora de controlar el ensuciamiento en un sistema de membranas. En los periodos siguientes, la resistencia asociada a  $R_C$  se mantiene aproximadamente constante, mientras que el efecto de  $R_I$  empieza a ser significativo, con lo que la resistencia total aumenta.
- Resistencia irrecuperable ( $R_{IR}$ ): la diferencia entre el valor obtenido para la resistencia total tras el lavado químico y mecánico y la inicial en los primeros días del periodo i demuestra que se ha generado un nuevo tipo de resistencia que no se había podido cuantificar hasta el momento. Suponiendo que la regeneración química de las membranas es capaz de eliminar toda la resistencia irreversible, quedaría una resistencia remanente adicional que ya no es posible eliminar. En el caso estudiado, y para concentraciones de sólidos totales similares (en torno a  $14 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ ), la membrana partía de un valor de la  $R_T$  de  $1,5\cdot 10^{12} \text{ m}^{-1}$  al final del periodo i, y tras la limpieza la  $R_T$  quedó en  $2,5\cdot 10^{12} \text{ m}^{-1}$  aproximadamente. Es decir, a lo largo de aproximadamente 750 días de operación la membrana ha desarrollado una resistencia adicional de  $1,0\cdot 10^{12}$

$m^{-1}$ . Esta resistencia sería la resistencia irrecuperable, puesto que la membrana no podrá ya alcanzar su capacidad de filtrado inicial y por lo tanto su rendimiento disminuye. En ausencia de roturas o degradación de la membrana, el valor que alcance esta resistencia irrecuperable a lo largo de la operación del módulo de será el que marque su vida útil, por lo que las estrategias de operación que se lleven a cabo deben estar encaminadas a prevenir su aparición y/o crecimiento.

La figura 57 muestra la evolución de los valores medios diarios de la permeabilidad normalizada a 20°C ( $K_{20}$ ) y de la concentración de sólidos totales en el licor mezcla a lo largo del periodo de operación de la planta piloto. En esta figura se aprecia aún mejor el momento en que se supera el umbral que delimita las condiciones subcríticas de filtración.



**Figura 57: Resultado de la operación a largo plazo: evolución de  $K_{20}$  y ST. (Periodos experimentales: (i)  $J_{20}=13,3$  LMH y  $T=33^{\circ}C$ ; (ii)  $J_{20}=10$  LMH y  $T=33^{\circ}C$ ; (iii)  $J_{20}=12$  LMH y  $T=25^{\circ}C$ ; (iv)  $J_{20}=13,3$  LMH y  $T=20^{\circ}C$ ; (v)  $J_{20}=11$  LMH y  $T_{Ambiente}$  (de 20 a 30°C); (vi)  $J_{20}=9$  LMH y  $T_{Ambiente}$  (de 30-15°C); (vii)  $J_{20}=9$  LMH y  $T_{Ambiente}$  (15-20°C); (viii)  $J_{20}=9$  LMH y  $T_{Ambiente}$  (20-25°C); (ix)  $J_{20}=11,5$  LMH y  $T=27^{\circ}C$ ).**

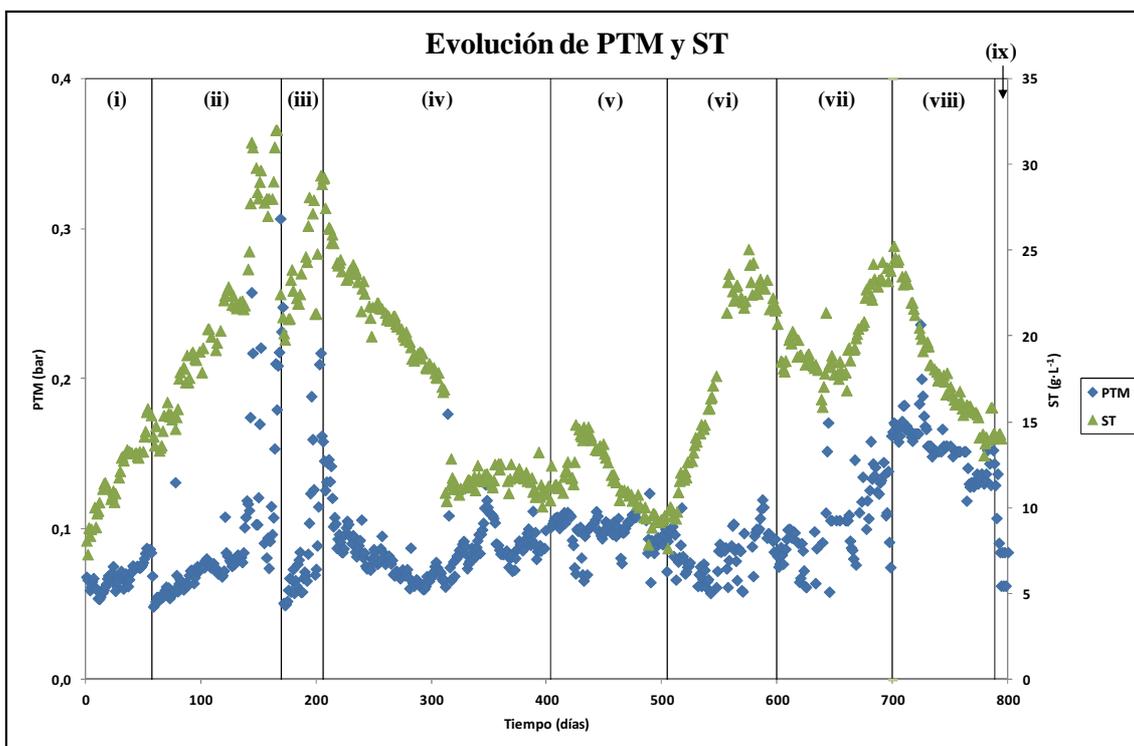
La figura 57 muestra que en los periodos i, ii, iii y mitad del iv la permeabilidad consigue recuperarse y volver a los valores de inicio del periodo i cuando la concentración de sólidos totales baja de 25  $g \cdot L^{-1}$ .

Sin embargo, a partir del día 300 disminuye desde 225  $LMH \cdot bar^{-1}$  hasta llegar a 100  $LMH \cdot bar^{-1}$  en torno al día 500, a pesar de que la concentración de sólidos totales se encuentra en el intervalo 10-15  $g \cdot L^{-1}$ . Por lo tanto, la aparición del ensuciamiento irreversible provoca una

pérdida de permeabilidad que no puede recuperarse por medio de los procesos de limpieza mecánica (DEG y contralavados).

Los periodos vi, vii y viii muestran que la permeabilidad disminuye continuamente aunque disminuya la concentración de sólidos totales. Sólo la limpieza es capaz entonces de recuperar parte de la permeabilidad inicial, aunque de los valores iniciales de 200-250 LMH·bar<sup>-1</sup> sólo se consiguen alcanzar los 100 LMH·bar<sup>-1</sup> aproximadamente.

Por último, la figura 58 muestra la evolución de los valores medios diarios de PTM y de la concentración de sólidos totales a lo largo del periodo de operación. En la figura 58 puede observarse como, de la misma manera que ocurría en las figuras 56 y 57 con la resistencia total y la permeabilidad, la PTM media sufre incrementos bruscos cuando la concentración de sólidos totales sobrepasa el umbral de 25 g·L<sup>-1</sup>. Puede comprobarse al final de los periodos ii y iii, y también en este caso recupera los valores iniciales cuando se baja de 25 g·L<sup>-1</sup>.



**Figura 58: Resultado de la operación a largo plazo: evolución de PTM y ST. (Periodos experimentales: (i)  $J_{20}=13,3$  LMH y  $T=33^{\circ}\text{C}$ ; (ii)  $J_{20}=10$  LMH y  $T=33^{\circ}\text{C}$ ; (iii)  $J_{20}=12$  LMH y  $T=25^{\circ}\text{C}$ ; (iv)  $J_{20}=13,3$  LMH y  $T=20^{\circ}\text{C}$ ; (v)  $J_{20}=11$  LMH y  $T_{\text{Ambiente}}$  (de 20 a  $30^{\circ}\text{C}$ ); (vi)  $J_{20}=9$  LMH y  $T_{\text{Ambiente}}$  (de 30- $15^{\circ}\text{C}$ ); (vii)  $J_{20}=9$  LMH y  $T_{\text{Ambiente}}$  ( $15-20^{\circ}\text{C}$ ); (viii)  $J_{20}=9$  LMH y  $T_{\text{Ambiente}}$  ( $20-25^{\circ}\text{C}$ ); (ix)  $J_{20}=11,5$  LMH y  $T=27^{\circ}\text{C}$ ).**

Durante periodo vi, la concentración de sólidos totales vuelve a situarse próxima a 25 g·L<sup>-1</sup>, pero no se produce un aumento de la PTM media. Esto es así ya que el flujo en ese periodo es menor (9 LMH) que en periodos anteriores (entre 13,3 y 10 LMH). La figura indica

que en el periodo vi, bajo esas condiciones de concentración de sólidos totales y DEG, este caudal de permeado se encontraría en el entorno de la región subcrítica.

En los periodos vii y viii se produce un aumento continuo de la PTM que sólo disminuye a valores menores de 0,1 bar una vez que se limpia la membrana,

Las figuras 56, 57 y 58 muestran, por lo tanto, que es posible operar con altas concentraciones de sólidos totales en condiciones subcríticas, controlando la DEG como estrategia para prevenir el ensuciamiento y el caudal de permeado. Sin embargo, si se suceden episodios en los que se opera en régimen supracrítico, la aparición del ensuciamiento irrecuperable impide volver a las condiciones de partida, al incrementarse la resistencia total y disminuir la permeabilidad de la membrana. Si esto sucede, para continuar operando bajo condiciones subcríticas deberán modificarse uno o varios parámetros de operación: disminuir la concentración de sólidos totales si el procesos de degradación de materia orgánica así lo permite, aumentar la DEG, reducir el flujo de permeado o modificar la secuencia de filtración de manera que aumente la frecuencia, el tiempo o la intensidad de los periodos de relajación o contralavado.

Por último, la figura 69 muestra el comportamiento del pH y de la alcalinidad del licor mezcla durante el periodo de operación de la planta piloto.

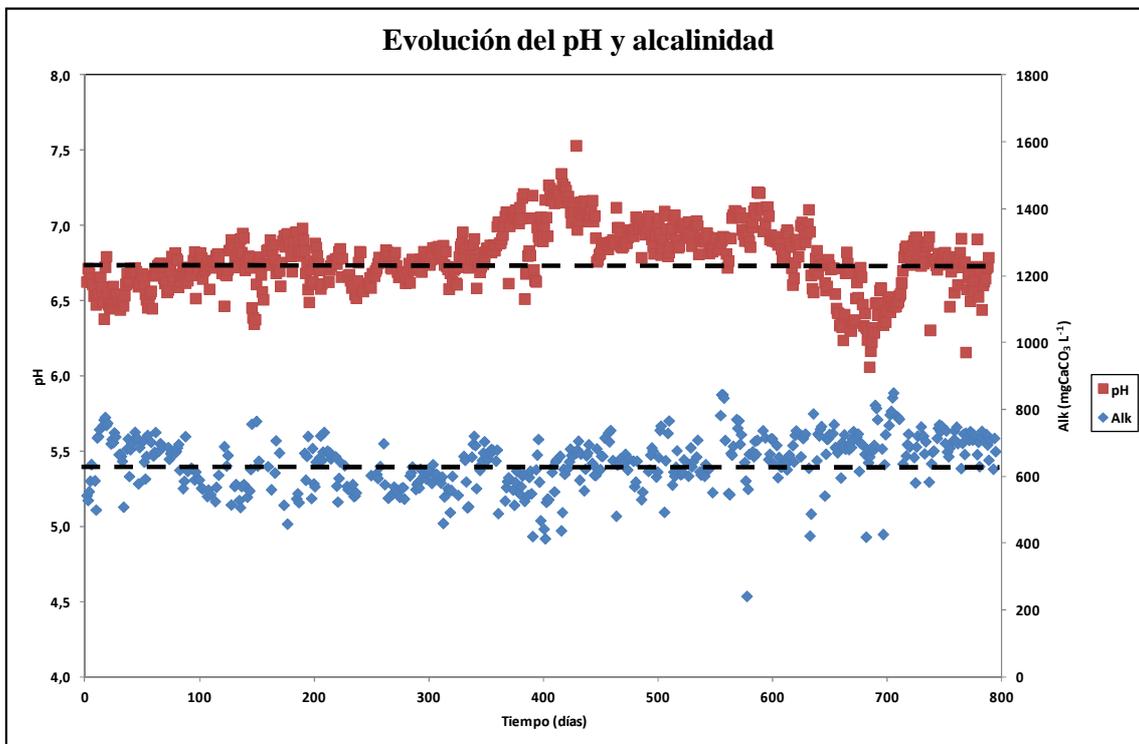


Figura 59: Evolución del pH y alcalinidad a lo largo del la operación a largo plazo.

Puede verse cómo, en general, el pH se mantiene estable durante todo el periodo, entre 6 y 7,3, aunque la mayor parte del tiempo está estabilizado en 6,75. Esto es importante ya que, tal y como se comentó en la introducción, el metabolismo anaerobio es muy sensible a las variaciones de este parámetro.

La estabilidad alcanzada se debe los altos valores de alcalinidad presentes, superiores a los del agua afluente ( $325 \text{ mgCaCO}_3\cdot\text{L}^{-1}$ ). La alcalinidad actúa como tampón amortiguando las variaciones en el pH que pudiesen darse. El incremento de alcalinidad observado con respecto al valor que presenta el agua de entrada a la planta se debe a la recirculación de biogás que se inyecta al módulo para homogeneizar el licor mezcla y controlar el ensuciamiento. El continuo contacto de la fase gaseosa con la fase líquida provoca que ambas se encuentren en equilibrio, alcanzándose la concentración de saturación en la fase líquida para el  $\text{CO}_2$ . Debido a esto, la concentración de  $\text{CO}_2$  en el licor mezcla es alta, contribuyendo al aumento de la alcalinidad y por lo tanto al control del pH.

Un efecto adicional de este control es la prevención de la formación de precipitados, que se forman en condiciones básicas. De esta manera, su contribución al ensuciamiento se reduce al mantenerse condiciones ligeramente ácidas o neutras. Bajo estas condiciones de pH, las especies susceptibles de formar precipitados permanecen en fase líquida.

Por último, En la figura 59 puede verse también que el periodo comprendido entre los días 400 y 600 aproximadamente presenta unos valores de pH en torno a 7, superiores al valor medio (6,75). Las gráficas 56 (correspondiente a la resistencia total) y la 57 (correspondiente a la permeabilidad), muestran que en este mismo periodo hay una disminución progresiva en los valores de permeabilidad y aumento de la resistencia total que ya no vuelven a recuperar los valores iniciales. Puesto que el valor de la concentración de sólidos totales no aumenta de manera significativa hasta el día 500, sería necesario un mayor grado de estudio de la influencia del pH sobre el ensuciamiento de las membranas, con el fin de conocer con mayor exactitud cómo afecta este parámetro a los mecanismos que regulan la generación del *fouling*.

## **6. CONCLUSIONES**



## 6. CONCLUSIONES

Los resultados obtenidos en el desarrollo del presente Trabajo Fin de Máster han permitido llegar a las siguientes conclusiones:

- ✓ El modelo de filtración predice una relación lineal entre PTM y J a concentraciones bajas de sólidos totales y/o altas DEG, puesto que la resistencia total se mantendría constante al ser despreciable la aportación de  $R_C$ , y se suponen constantes las aportaciones de  $R_M$ ,  $R_I$  y  $R_{IR}$  en procesos de filtración a baja presión. Esta relación lineal tendería a desaparecer al verse incrementada la aportación de  $R_C$ , es decir, al formarse una torta de sólidos sobre la membrana al aumentar la concentración de sólidos totales y/o o disminuir la DEG.
- ✓ El efecto de la DEG a la hora de moderar los incrementos de PTM en el proceso de filtración con concentración de sólidos constante es más importante con valores de flujo elevados. Por lo tanto, los problemas de ensuciamiento a valores altos de J pueden ser controlados mediante un valor adecuado de DEG.
- ✓ Los efectos de la DEG sobre la PTM necesaria para obtener un flujo determinado aumentan al incrementarse la concentración de sólidos totales. Como muestra de esto, en los ensayos con una concentración de sólidos totales de  $11,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ , un incremento de la DEG de  $0,17 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$  a  $0,23 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$  no supuso una disminución significativa de la PTM necesaria para mantener un flujo de 14 LMH. Para ese mismo valor del flujo, el mismo incremento de la DEG supuso una disminución de la PTM de 0,04 bar en el ensayo a  $18,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  y de 0,07 bar en el ensayo a  $22,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$  de concentración de sólidos totales.
- ✓ La  $K_{med}$  disminuye al aumentar el J, para una misma concentración de sólidos totales. Bajo estas condiciones, los experimentos con una DEG mayor presentan una  $K_{med}$  mayor gracias a la reducción en la formación de torta de sólidos sobre la superficie de la membrana. Por tanto, un aumento de la concentración de los sólidos totales supone que la  $K_{med}$  disminuya para un mismo valor de J y DEG.
- ✓ Es posible mantener bajas velocidades de ensuciamiento de las membranas ( $0\text{-}3 \text{ mbar}\cdot\text{min}^{-1}$ ) a concentraciones elevadas de sólidos totales ( $22,5\text{-}28,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ ) con DEG relativamente bajas ( $0,23\text{-}0,33 \text{ Nm}^3\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$ ) y J aceptables ( $9\text{-}12 \text{ LMH}$  aproximadamente). El hecho de que los ensayos se realizaran en una planta piloto bajo condiciones extrapolables a una planta industrial demuestra la viabilidad de esta tecnología, al tratarse de resultados similares a los establecidos en la bibliografía para plantas aerobias.

- ✓ Teniendo en cuenta las relaciones entre concentración de sólidos totales, DEG, J y ensuciamiento, es posible optimizar el proceso de filtración de manera que se prolongue la vida útil de la membrana y no se produzcan consumos energéticos innecesarios relacionado con la operación asociados, por ejemplo, a bombeos de gas y permeado que no aportasen beneficio alguno en cuanto a moderar la PTM y prevenir el ensuciamiento de la membrana.
- ✓ Para una misma concentración de sólidos totales, el  $J_C$  y la DEG presentan una relación lineal dentro del rango de valores estudiados. Además, los valores de  $J_C$  disminuyen al incrementarse la concentración de sólidos totales, para una DEG constante.
- ✓ La relación entre  $J_C$  y la concentración de sólidos totales no es lineal, siendo mayores los valores de flujo crítico a concentraciones de sólidos totales bajas. Además, la influencia de las variaciones en la DEG a la hora de establecer las condiciones críticas de filtración es más acusada a valores altos de la concentración de sólidos totales. La influencia de la concentración de sólidos totales sobre  $J_C$  disminuye a partir de  $22,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ , y tiende asintóticamente a un valor constante a partir de  $28,5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ , para el intervalo de DEG estudiado. No se han establecido las razones de este fenómeno, aunque la bibliografía apunta a que el origen podría estar en la modificación del comportamiento reológico del fango a concentraciones altas de sólidos.
- ✓ El método de flujo escalonado modificado utilizado en el presente Trabajo Fin de Máster permite establecer unas condiciones críticas de filtración que alargan la vida útil de las membranas, pero no es capaz de prevenir totalmente la formación de ensuciamiento irreversible y/o irrecuperable.
- ✓ La regeneración química de la membrana es capaz de recuperar parte de la capacidad filtrante de la membrana, al eliminar la componente irreversible del ensuciamiento. En el caso de este trabajo, se incrementaron en un 63% de media los valores del flujo crítico tras la regeneración química de la membrana.
- ✓ El seguimiento a largo plazo del funcionamiento de las membranas permite concluir que una adecuada estrategia de operación, en cuanto a distribución de las diferentes fases que componen el proceso de separación (filtración, relajación, contralavado...), concentración de sólidos totales y DEG se refiere, es capaz de reducir el grado de ensuciamiento de las membranas, y por lo tanto alargar la vida útil y la rentabilidad del proceso.
- ✓ La recirculación de biogás al tanque de membrana presenta un efecto beneficioso adicional en estos sistemas de tratamiento de aguas residuales, que se añade al de

aportar turbulencia y homogeneización al licor mezcla. El continuo contacto de la fase gaseosa con la fase líquida provoca que los componentes de ambas se encuentren en equilibrio, por lo que la concentración de CO<sub>2</sub> disuelto es la de saturación. Esto supone un aumento de la alcalinidad en la fase líquida, así como una mejora del control del pH, vital para reducir problemas asociados a la inhibición de la biomasa anaerobia. El control del pH previene a su vez la formación de precipitados que incrementarían la probabilidad de problemas de ensuciamiento.



## **7. BIBLIOGRAFÍA**



## 7. BIBLIOGRAFÍA

- Aiyuk, S.E. y Verstraete, W., (2004) *Sedimentological evolution in a UASB treating SYNTHES, a new representative synthetic sewage at low loading rates*. *Bioresource Technology* 93; 269-278.
- APHA, (2005) *Standard methods for the Examination of Water and Wastewater, 21<sup>th</sup> edition*. American Public Health Association/American Water Works Association/Water Environmental Federation, Washington DC, USA.
- Bottino, A., Capannelli, G., Comité, A., Mangano, R., (2009) *Critical flux in submerged membrane bioreactors for municipal wastewater treatment*. *Desalination*. 249; 748-753.
- Chang, I.S., Clech, P.L., Jefferson, B., Judd, S. (2002) *Membrane fouling in membrane bioreactors for wastewater treatment*. *Journal of Environmental Engineering*. 128; 1018-1029.
- Cho, B.D., Fane, A.G., (2002) *Fouling transients in nominally sub-critical flux operation of a membrane bioreactor*. *Journal of Membrane Science*. 209; 391-403.
- Field, R. W., Wu, D., Howell, J.A., Gupta, B. B., (1995) *Critical flux concept for microfiltration foulins*. *Journal of Membrane Science*. 100; 259-272.
- Guglielmi, G., Chiarani, D., Judd, S.J., Andreottola, G., (2007) *Flux criticality and sustainability in a hollow fibre submerged membrane bioreactor for municipal wastewater treatment*. *Journal of Membrane Science*. 289; 241-248.
- Howell, J.A., Chua, H.C., Arnot, T.C., (2004) *In situ manipulation of critical flux in a submerged membrane bioreactor using variable aeration rates, and effects of membrane history*. *Journal of Membrane Science*. 242; 13-19.
- Jamal, W.A., y Mahmoud, N., (2009) *Comunity onsite treatment of cold strong sewage in a UASB-septic tank*. *Bioresource Technology* 100 (3); 1061-1068.
- Jeison, D., Van Lier, J.B., (2006) *Cake layer formation in anaerobic submerged membrane bioreactors (AnSMBR) for wastewater treatment*. *Journal of Membrane Science*. 284; 227-236.
- Jeison, D., Van Lier, J.B. (2007) *Cake formation and consolidation: main factors governing the applicable flux in anaerobic submerged membrane bioreactors (AnSMBR) treating acidified wastewaters*. *Separation and Purification Technology*. 56; 71-78.
- Judd, S., (2011) *The MBR Book. Principles and applications of membrane bioreactors for water and wastewater treatment*. Elsevier. Second Edition.

- Le Clech, P., Jefferson, B., Soung Chang, I., Judd, S.J., (2003) *Critical flux determination by the flux-step method in a submerged membrane bioreactor*. Journal of Membrane Science. 227; 21-93.
- Lester, J.N., Soares, A., San Martín, D., Harper, P., Jefferson, B., Brigg, J., Wood, E. and Cartmell, E., (2009) *A novel approach to the anaerobic treatment of municipal wastewater in temperate climates through primary sludge fortification*. Environmental Technology 30 (10), 985- 994.
- Martin, M.A., de la Rubia, M.A., Martín, A., Borja, R., Montalvo, S. y Sanchez, E. (2010) *Kinetic evaluation of psychrophilic anaerobic digestion of synthetic domestic sewage using an upflow filter*. Bioresource Technology 101 (1), 131-137.
- Pollice, A., Brookes, A., Jefferson, B., Judd, S., (2004) *Sub-critical flux fouling in membrane bioreactors-a review of recent literature*. Desalination. 174; 221-230.
- Polo, J., Seco, A., (2003) *Tratamientos físicos y químicos de aguas residuales*. Editorial Universidad Politécnica de Valencia.
- Polo, J., Seco, A., (2003) *Tratamientos biológicos de aguas residuales*. Editorial Universidad Politécnica de Valencia.
- Robles, A., Ruano, M.V., García-Usach, F., Ferrer, J., (2012) *Sub-critical filtration conditions of commercial hollow-fibre membranes in a submerged anaerobic MBR (HF-SAnMBR) system: The effect of gas sparging intensity*. Bioresource Technology. 114; 247–254.
- Robles, A., (2010) *Estudio en planta piloto de la aplicación de la tecnología de membranas para el tratamiento anaerobio de aguas residuales urbanas*. Trabajo Final de Máster. Universidad Politécnica de Valencia.
- Rosenberger, S., Laabs, C., Lesjean, B., Gnirss, R., Amy, G., Jekel, M., Schrotter, J-C., (2006) *Impact of colloidal and soluble organic materials on membrane performance in membrane bioreactors for municipal wastewater treatment*. Water Research. 40; 710-720.
- Van der Marel, P., Zwijnenburg, A., Kemperman, A., Wessling, M., (2009) *An improved flux-step method to determine the critical flux and the critical flux for irreversibility in a membrane bioreactor*. Journal of Membrane Science. 332; 24-29.
- WRC (1992). *Simple titration procedures to determine  $H_2CO_3^*$  alkalinity and short-chain fatty acids in aqueous solutions containing known concentrations of ammonium, phosphate and sulphide weak acid/bases*, Report No. TT 57/92, Water Research Commission, University of Cape Town, Pretoria, Republic of South Africa.

Wu, Z., Wang, Z., Huang, S., Mai, S., Yang, C., Wang, X., Zhou, Z., (2008) *Effects of various factors on critical flux in submerged membrane bioreactors for municipal wastewater treatment.* Separation and Purification Technology. 62; 56-63.

