BIORREACTORES DE MEMBRANA ANAEROBIOS PARA TRATAMIENTO DE AGUAS RESIDUALES DOMÉSTICAS. ESTUDIO PRELIMINAR

ANAEROBIC MEMBRANE BIOREACTORS FOR DOMESTIC WASTEWATER TREATMENT. PRELIMINARY STUDY

Luisa Vera^{*1}, Ignacio Ruigómez¹, Enrique González¹, Paula Bodelón¹, Juan Rodríguez-Sevilla¹ (1) Universidad de La Laguna, Facultad de Química, Departamento de Ingeniería Química y Tecnología Farmacéutica, Avda. Astrofísico Francisco Sánchez s/n, 38200 La Laguna - España *autor de contacto (email: luvera@ull.edu.es)

Recibido: 31/07/2014 - Evaluado: 11/09/2014 - Aceptado: 30/10/2014

RESUMEN

La operación de biorreactores anaerobios de membrana sumergida (BRMSAn) para tratamiento de aguas residuales domésticas ha sido estudiada a escala laboratorio, con el objeto de definir las condiciones de filtración sostenibles de las suspensiones generadas a lo largo del proceso. Durante la experimentación desarrollada, la degradación de materia orgánica por vía anaerobia ha logrado rendimientos de eliminación de DQO_T entre el 85 y el 93%. Además dicha degradación ha originado biogás tras 12 días de operación y su composición relativa en metano ha sido del 60% tras 25 días de operación. También se ha realizado una comparación del comportamiento entre biorreactores de membrana (BRMs) operados en condiciones aerobias y anaerobias en términos de filtrabilidad, encontrándose que ambos sistemas se comportan de manera similar una vez alcanzado el estado estacionario.

ABSTRACT

The operation of submerged anaerobic membrane bioreactors (SAnMBRs) for domestic wastewaters treatment was studied in laboratory scale, with the objective to define sustainable filtration conditions of the suspensions along the process. During continuous experiments, the organic matter degradation by anaerobic way showed an average DQO_T removal of 85% and 93%. Indeed, the degradation generated biogas after 12 days of operation and its relative methane composition was of 60% after 25 days of operation. Additionally, the comparison between membrane bioreactors (MBRs) performance in aerobic and anaerobic conditions in filterability terms, reported that both systems behave similarly once reached the stationary state.

Palabras clave: ensuciamiento de la membrana; flujo sostenible; tiempo de filtración; burbujeo de gas Keywords: membrane fouling; sustainable flux; filtration time; gas bubbling

INTRODUCCIÓN

Durante la última década, los procesos de digestión anaerobia han ganado popularidad como consecuencia de su capacidad para obtener energía y recuperar nutrientes mediante el tratamiento de aguas residuales, produciendo reducidos volúmenes de lodo (Smith *et al.*, 2012). Este tipo de tecnología es factible en países en vía de desarrollo donde presentan un gran potencial en el tratamiento de aguas residuales al no requerir de un equipamiento avanzado y ser económicamente viables (Foresti, 2001). No obstante, los elevados tiempos de retención de sólidos (TRS) requeridos para favorecer el lento crecimiento de los microorganismos metanogénicos conduce a que los volúmenes de diseño de los digestores sean elevados para asegurar las conversiones deseadas y esto limita su aplicación a gran escala. Por otro lado, la sensibilidad del proceso a los cambios de temperatura restringe su implantación y la baja calidad de los efluentes obtenidos (Chan *et al.*, 2009) obliga a hacer uso de post-tratamientos para cumplir las normativas de reutilización, como el RD1620/2007 en España (BOE, 2007), si es el objetivo final.

Los biorreactores de membranas (BRM) son sistemas muy compactos y eficientes en la separación de materia en suspensión y coloidal, que permiten obtener aguas regeneradas de elevada calidad físico-química y microbiológica. Esto ha favorecido su rápida implantación sustituyendo el esquema clásico de las depuradoras tradicionales de lodos activos y que hoy en día estén ampliamente distribuidos por todo el mundo (Judd, 2010). En el caso de España, en 2011 ya se contaba con 45 sistemas de BRM en funcionamiento, de los cuales el primero fue instalado en las Islas Canarias en el año 2002 (Esteban *et al.,* 2012). Otra de las ventajas tecnológicas de los BRM radica en que permiten independizar el tiempo de retención hidráulico (TRH) del TRS, y con configuraciones de unidades más compactas y de reducido volumen. No obstante, estos sistemas requieren gran cantidad de energía para mantener las condiciones aerobias y promover la turbulencia necesaria con que reducir los fenómenos de ensuciamiento que afectan a los módulos de membrana durante la operación.

La combinación de ambas tecnologías, degradación anaerobia y BRM, ha dado lugar a los biorreactores de membrana anaerobios (BRMAn). Esta nueva tecnología aúna las ventajas que presentan los dos sistemas por separado, como son la producción de efluentes libres de sólidos, la recuperación de nutrientes, la eliminación de gran número de patógenos y la producción de biogás, si bien presenta aspectos críticos a solventar para asegurar su desarrollo a gran escala, como son los bajos flujos de permeado y el alto ensuciamiento de las membranas (Ozgun *et al.*, 2013). Por otra parte, en los últimos años varios estudios han mostrado que los BRMAn pueden ser eficientes en el tratamiento de aguas residuales de origen doméstico a temperatura ambiente en zonas de clima templado o tropical (Ho & Sung, 2009). Por tanto, los BRMAns se perfilan como una tecnología muy prometedora para ser aplicada en zonas aisladas como el archipiélago canario, donde el agua y el terreno disponible son bienes escasos, de primordial importancia.

No obstante, la principal limitación de los BRMAns sigue siendo el ensuciamiento de las membranas, por ello la mayor parte de los estudios de investigación publicados en este campo en los últimos años, se han centrado en este fenómeno y su naturaleza, analizando las condiciones de filtrabilidad de la suspensiones anaerobias, su relación con las condiciones de operación así como, el desarrollo de estrategias que permitan mitigar el ensuciamiento y hacer sostenible la operación (Stuckey, 2012).

El presente trabajo se enfoca en la determinación de las condiciones óptimas de operación de biorreactores de membrana sumergida anaerobios (BRMSAn), como son el flujo de permeado (J_P) y el flujo de retrolavado (J_R) , para tratar agua residual doméstica real a escala laboratorio y a temperatura ambiente. Además se ha evaluado la influencia de distintos modos de gasificación (intermitente y continua) en el control del ensuciamiento de la membrana. También se ha realizado un seguimiento del proceso de degradación anaerobio y su influencia en la operación de la membrana. Por último, se ha realizado un estudio comparativo del comportamiento exhibido por biorreactores de membrana operados en condiciones anaerobias y aerobias en términos de filtrabilidad en ensayos de larga duración.

MATERIALES Y MÉTODOS

Dispositivo experimental

Los ensayos de laboratorio se llevaron a cabo en reactores de fabricación propia equipados con módulos de membrana de fibra hueca ZW-1 (GE Water & Process Technologies), los cuales tienen una superficie nominal de 0.047 m². Las membranas presentan un tamaño de poro promedio de 0.04 µm y operan sumergidas, de manera que la filtración del licor mezcla se lleva a cabo de fuera a dentro gracias al vacío generado por una bomba de engranajes de accionamiento magnético (P-1)(MICROPUMP[®]-GA Series). Tal y como se muestra en la Figura 1, el módulo ZW-1 se encuentra sumergido verticalmente en el reactor, sujeto a la tapa que garantiza la ausencia de oxígeno en el interior del mismo. El volumen útil de cada reactor es de 3 L y dispone de agitación magnética regulable de fondo para mantener la homogeneidad de la suspensión o licor mezcla (LM). A medida que el volumen del depósito de operación disminuve durante el proceso de filtración, un controlador de nivel actúa sobre la bomba peristáltica (P-2)(MASTERFLEX L/S) de tal forma que el sistema permite alimentar de forma continua el agua residual procedente de un tanque de 100 L de capacidad. Durante la experimentación, el proceso de filtración se ha llevado a cabo a flujo constate es decir, estableciendo el valor del flujo de permeado deseado y manteniéndolo constante a lo largo de los ensayos, siendo la presión transmembrana la variable de operación cuva evolución temporal ha sido registrada a través de un transductor de presión (PI)(SENSOTEC). Mediante el software de control de la unidad experimental, se ha pre-establecido un valor de presión transmembrana, denominado de consigna (PTM_c) que establece el fin del ciclo de filtración y el comienzo del ciclo de retrolavado. La duración y el flujo de retrolavado también son establecidos previamente en el sistema de control de la unidad. El biogás producido en el proceso de depuración de las aguas residuales se ha recirculado parcialmente para promover el movimiento de las fibras del módulo ZW-1 y dificultar así la deposición de sólidos sobre la superficie de la membrana, haciendo uso del tubo de aireación central incorporado en el propio módulo de membranas. La recirculación del biogás ha sido promovida por la acción de un compresor (SECOH MK-10), controlando el caudal recirculado al reactor a través del módulo de membrana por medio de un controlador de flujo másico (Bronkhorst®-EL-FLOW, The Netherlands) accionado también, por medio del software de control.



Fig. 1: Diagrama de la instalación de laboratorio.

Vera *et al*.

Métodos analíticos

La demanda química de oxígeno (DQO), los sólidos suspendidos totales del licor mezcla (SST), los sólidos suspendidos volátiles del licor mezcla (SSV), el pH, la conductividad y las alcalinidades total (AT), parcial (AP) e intermedia (AI) se han determinado de acuerdo a los métodos normalizados (APHA, 2005). La DQO soluble corresponde a la DQO resultante del filtrado obtenido al filtrar la suspensión o alimentación por filtro de 0,45 · m de diámetro de poro. Para determinar el tiempo de filtrado (TTF, siglas en inglés) se ha modificado el método 2710-H (APHA, 2005) de manera que se ha filtrado 50 mL de lodo o licor mezcla a través de filtros de fibra de vidrio WHATMAN 934 AH con el fin de obtener 12,5 mL de filtrado. La distribución de tamaño de partícula del lodo o licor mezcla se ha medido por medio del equipo Malvern Mastersizer 2000 y la unidad de dispersión por vía húmeda, Hydro SM (Malvern Instruments Ltd., UK). El tamaño de flóculo se ha determinado en base al método propuesto por Ng *et al.* (2005), que consiste en centrifugar la muestra de lodo o licor mezcla durante 2 minutos a 1300 G y a continuación, medir la turbidez del sobrenadante obtenido en un turbidímetro HACH 2100D. En cuanto a la composición relativa del biogás, esta ha sido determinada mediante cromatografía de gases (Agilent Technologies, 7820) equipado con columna Tandem Select Permanent Gases/CO₂, haciendo uso de un detector de conductividad térmica (DCT).

Protocolo de limpieza química de la membrana

Las membranas tras cada ensayo experimental, han sido extraídas de los reactores para ser sometidas a un protocolo de limpieza externo, que ha consistido primero, en un lavado con agua de red a presión, seguida de la inmersión en agua de red y agitación continua con aire durante 10 minutos a fin de retirar las partículas más gruesas instaladas sobre y entre las membranas. Posteriormente, se ha realizado una limpieza química, en base al protocolo de limpieza establecido por el propio fabricante de membranas (GE Water & Process Technologies), sumergiendo la membrana en una disolución de 500 ppm de hipoclorito sódico (NaClO) durante 4 horas de duración para eliminar sustancias orgánicas. Y por último, la membrana ha sido sumergida en una disolución de ácido cítrico (8 g/L) para eliminar las sustancias inorgánicas adheridas. La Figura 2 muestra el estado en que queda el módulo de membrana tras cada etapa del proceso de limpieza descrito anteriormente.



Fig. 2: Estado de la membrana tras las diferentes etapas del protocolo de limpieza: (a) membrana sucia, (b) membrana tras enjuague y aireación, (c) membrana tras limpieza con disolución básica y (d) tras limpieza con disolución ácida.

Suspensión anaerobia inoculada

Como se comentó anteriormente, durante el proceso experimental se pusieron en marcha dos biorreactores anaerobios (BRMAn₁ y BRMAn₂) a fin de realizar trabajos complementarios en ambos y abordar mayor número

de ensayos en paralelo. Ambos reactores fueron inoculados inicialmente con tres litros de lodo procedente del digestor de lodos de la estación depuradora de aguas residuales (EDAR) ubicada en Santa Cruz de Tenerife (Islas Canarias, España), el cual opera de manera regular y estable. Dichas suspensiones están compuestas en su mayor parte, por los lodos generados en los tratamientos primario y secundario de la propia EDAR pero también por residuos procedentes de procesos agroindustriales y fosas sépticas. Las características iniciales de dicha suspensión se resumen en la Tabla 1.

Parámetro	Unidades	Suspensión anaerobia inoculada
Sólidos suspendidos totales, SST	mg/L	6230
Sólidos suspendidos volátiles, SSV	mg/L	4590
Demanda química de oxígeno, DQO _T	mg/L	8965
Demanda química de oxígeno soluble, DQOs	mg/L	506
рН	-	7,55
Conductividad	mS/cm	6,95
Tiempo de filtrado, TTF	min	9,88
No floculados	NTU	617
Diámetro medio de partícula	μm	43,8

Tabla 1: Características iniciales de la suspensión anaerobia inoculada en los BRMAns

Evaluación del flujo crítico de la membrana

El *flujo crítico* de la membrana se define como el mínimo flujo capaz de producir ensuciamiento en la membrana (Le-Clech *et al.,* 2003) y es un concepto ampliamente aceptado para caracterizar la filtrabilidad de una suspensión. En los últimos años, el concepto de flujo crítico ha dado lugar a otro concepto similar pero de mayor aplicación práctica, el *flujo sostenible* (Ng *et al.,* 2005). Este se define como el flujo a partir del cual la presión transmembrana y por tanto, el ensuciamiento de la membrana aumenta significativamente a valores no aceptables desde un punto de vista operativo. El flujo sostenible depende de las condiciones hidrodinámicas, la naturaleza de la alimentación y el tiempo de operación, permitiendo establecer unas condiciones sostenibles de ensuciamiento y viables económicamente.

El flujo crítico de la membrana ZW-1 al filtrar la suspensión anaerobia del reactor BRMAn₂ ha sido determinado por el método modificado del flujo escalonado (*flux-step method*) propuesto por Le-Clech *et al.* (2003). El método original consiste en aplicar flujos de filtración crecientes a incrementos constantes, durante un intervalo de tiempo también constante, hasta un valor límite y medir la variación experimentada por la presión transmembrana en ese intervalo. La modificación incorporada a dicho método en el presente trabajo, ha consistido en la realización de retrolavados de la membrana entre los incrementos de flujo impuestos, durante 30 s a un flujo de retrolavado de 45 L/hm². El flujo de permeado se ha ido incrementando desde 5 hasta 12 L/hm² a intervalos-escalones de 1 L/hm², para posteriormente irse disminuyendo desde 12 a 5 L/h m² con un intervalo idéntico. Los ensayos de flujo escalonado se han realizado bajo gasificación constante de nitrógeno en el seno de la suspensión, incorporado a través del eje central del módulo de membranas a un caudal de 1L/min.

Modo y variables de operación de las membranas

Modo de operación

La duración de los ciclos de filtración (t_f) es un parámetro utilizado habitualmente para controlar la operación de los biorreactores de membrana convencionales, constituyendo el modo de operación denominado *temporizado*, en el que se actúa de forma preventiva frente al ensuciamiento de las membranas aplicando limpiezas físicas de la membrana, generalmente retrolavado a intervalos de tiempo pre-establecidos (Robles *et al.*, 2013). El modo *temporizado* no optimiza necesariamente el proceso, ya que se realizan limpiezas independientemente del

estado de ensuciamiento de la membrana, es decir, pudiendo encontrarse lo suficientemente limpia para seguir con el proceso de filtración, lo que conlleva un gasto adicional de permeado, además de un aumento en el consumo energético (Vera *et al.*, 2014). En el presente estudio se ha optado por trabajar por *presión de consigna*, un modo de operación alternativo que permite que el sistema fije de manera automática la frecuencia de los retrolavados efectuados en base al ensuciamiento aceptable de la membrana definido por un valor límite de la presión transmembrana denominado presión transmembrana de consigna (PTM_c) (Vera *et al.*, 2014). En los experimentos realizados en el presente estudio, la PTM_c se ha establecido en 50 kPa en base a estudios anteriores del grupo de investigación.

Por otra parte, indicar que en el desarrollo de los estudios, los licores mezcla se han mantenido homogenizados por medio de la agitación continua de fondo a 300 rpm en ambos reactores.

Influencia de los flujos de permeado y de retrolavado sobre el ensuciamiento de la membrana

El análisis de la influencia de los flujos de permeado y retrolavado sobre el ensuciamiento de la membrana se ha llevado a cabo en el reactor BRMAn₁ aplicando gasificación intermitente en el interior del módulo a un caudal de 1L/min y frecuencia (10 s on-15 s off). En base a estudios preliminares, se ha variado el flujo de permeado entre 7 y 10 L/hm², valores próximos al flujo crítico exhibido por la membrana para suspensiones anaerobias de alta carga. En cuanto a las condiciones de retrolavado ensayadas: el tiempo de retrolavado ha sido en todos los ensayos 30 s, si bien el flujo de retrolavado se ha variado entre 45 y 60 L/hm².

Influencia del régimen de gasificación

El estudio relativo a la influencia del régimen de gasificación sobre el ensuciamiento de las membranas se ha realizado en el reactor BRMAn₂, con un caudal de gas de 1 L/min, comparando el modo intermitente (10 s on-15 s off) y el continuo. Para ello, se han mantenido constantes el resto de variables de operación ($J_P=7$ L/hm², $J_R=45$ L/hm², PTM_C=50 kPa) así como, la agitación de fondo del reactor (300 rpm).

RESULTADOS Y DISCUSIÓN

Flujo crítico y flujo sostenible

Los resultados obtenidos durante la determinación del flujo crítico por el método modificado de flujo escalonado muestran que este ha de ser inferior a 5 L/hm² (mínimo flujo de operación de la unidad experimental), dado que incluso a este flujo bajo se observa una velocidad de ensuciamiento ($v_{ens} = \Delta PTM/\Delta t$) próxima a 2 Pa/s (Fig. 3). De hecho se observa que la velocidad de ensuciamiento aumenta con el flujo a razón de 1-2,5 Pa/s en cada salto de flujo impuesto, existiendo un cambio de tendencia a partir de 9-10 L/hm² en que dicha velocidad de ensuciamiento se incrementa de manera exponencial. Por otro lado, las velocidades de ensuciamiento han evolucionado en función del flujo impuesto de igual manera durante la fase de incremento y de descenso del flujo tal y como se observa en la Figura 3. Por tanto, el ensuciamiento construido sobre la superficie de la membrana de ultrafiltración en los intervalos-escalones de tiempo establecidos, bajo el flujo de retrolavado y caudal de gas aplicados, es incapaz de consolidarse como ensuciamiento irreversible, de manera que la acción del retrolavado resulta ser suficiente para vencer las fuerzas de adhesión de las partículas, haciendo que las mismas se desprendan del módulo de membranas, lo que concuerda con los resultados obtenidos por otros autores (Jeison *et al.*, 2006).

Estos resultados junto a otros previos realizados en el seno del grupo de investigación, han permitido establecer que el flujo sostenible del sistema se ha de encontrar entre 7-10 L/hm². Flujos de permeado inferiores a 7 L/hm² dan lugar a velocidades de ensuciamiento bajas, pero el flujo neto producido puede hacer insostenible la operación dado el volumen de permeado necesario para efectuar el retrolavado; por otro lado, un flujo superior a 10 L/hm²

provoca el ensuciamiento rápido de la membrana, limitando el tiempo efectivo de operación. Los ensayos de larga duración realizados en los BRMAn han sido realizados en este rango de flujos de permeado (7-10 L/hm²).



Fig. 3: Ensayo de flujo escalonado para la suspensión del reactor anaerobio BRMSAn₂.

Estabilidad del proceso de degradación anaerobia

A lo largo de los ensayos realizados en el laboratorio, cada uno de los biorreactores anaerobios de membrana (BRMAn) ha evolucionado de manera diferente al haberse realizado ensayos con condiciones de operación distintas en cada uno de ellos, y por tanto, la estabilización del proceso anaerobio no se ha producido al unísono en ambos biorreactores. Esto explica las diferentes características medias que las aguas residuales alimentadas y los licores mezcla de cada biorreactor han presentado durante el desarrollo de los estudios y que se resumen en la Tabla 2. No obstante, a pesar de las diferencias comentadas, ambos reactores han logrado depurar satisfactoriamente las aguas residuales alimentadas constituidas por los efluentes del decantador primario de la EDAR de Santa Cruz de Tenerife. De hecho, los rendimientos de depuración alcanzados en términos de DQO total (DQO_T) han estado comprendidos entre el 85 y el 93%, y referidos a la DQO soluble (DQO_s) han sido superiores en ambos biorreactores (97%) y similares a los resultados obtenidos en estudios previos (Lin *et al.*, 2010).

En base a los SSTLM, ambos biorreactores han logrado retener la materia particulada presente en la suspensión (Tabla 2), si bien la turbidez media de los permeados ha presentado valores elevados considerando el diámetro medio de poro de la membrana (0,03 μ m). Este hecho en instalaciones similares suele estar asociado al recrecimiento bacteriano y afloramiento de algas en el circuito de permeado cuando no se realizan limpiezas de mantenimiento in-place de la instalación. En el caso de los reducidos volúmenes de los biorreactores de laboratorio operados en este estudio, se decidió no realizar limpiezas de mantenimiento in-place a fin de evitar el impacto negativo de las disoluciones de hipoclorito utilizadas habitualmente en este protocolo, sobre las poblaciones microbianas presentes en los licores mezcla. En términos de DQO soluble, la calidad media de los permeados indica una eliminación de la materia microcoloidal y soluble de la alimentación entorno al 29-34%, según el biorreactor.

Parámetro	Unidades	A _{BRMAn1}	LM _{BRMAn1}	P _{BRMAn1}	A _{BRMAn2}	LM _{BRMAn2}	P _{BRMAn2}
SST	mg/L	1101	6250	-	2373	4700	-
SSV	mg/L	909	5290	-	1832	3900	-
DQO _T	mg/L	1969	9940	286,3*	3033	8071	217,3*
DQO _s	mg/L	434,5	375	286,3*	307	510,9	217,3*
TTF	min	-		-	-	2,74	-
No floculados	NTU	-	737	-	-	568	-
Turbidez	NTU	723,4	-	2,59	1950,9	-	20,39
Т	°C	20,4	20,1	20,4	20,1	19,0	20,6
pН		7,95	7,44	7,66	8,04	7,37	7,67
Conductividad	mS/cm	2,32	2,47	2,63	2,88	3,30	3,16

Tabla 2: Valores promedio de diversos parámetros característicos de las diferentes corrientes en ambos biorreactores anaerobios.

A: alimentación; LM: licor mezcla o suspensión anaerobia en el reactor; P: permeado (*) La DOO total y soluble del permeado coinciden dado el diámetro medio de poro de la membrana (0,03 ·m)

Influencia de los flujos de permeado y de retrolavado sobre el ensuciamiento de la membrana

En la Figura 4 se muestra la evolución experimentada por la duración de los ciclos de filtración a lo largo de los ensayos realizados en el reactor BRMAn₁, bajo condiciones de gasificación intermitente (10 s on – 15 s off). En una primera etapa, operando a flujo de permeado de 10 L/hm² y de retrolavado de 60 L/hm², se ha observado un descenso acusado del tiempo de filtración que se ha estabilizado en torno a una duración de 3,5 minutos tras 72 horas de experimentación. A su vez, esta disminución de duración del ciclo de filtración ha coincidido con el aumento de la presión transmembrana inicial de ciclo (PTM₀) es decir, de la presión transmembrana inicial con la que da comienzo cada nuevo ciclo de filtración tras la acción del retrolavado (Figura 4). Este incremento de PTM₀ indica la aparición del retrolavado impuesto (Drews, 2010). Este ensuciamiento surge de la deposición inicial irreversible de coloides y sustancias solubles que servirán para la posterior formación de la torta o capa colmatante. Al analizar la importancia relativa de la materia coloidal y soluble, expresada como DQO_s respecto a la fracción particulada presente en el licor mezcla, ésta representa tan solo un 6% de la DQO_T, pero su papel es crucial en la operación de la membrana. En sus estudios, Jeison y van Lier (2006) observaron un comportamiento similar en términos de ensuciamiento cuando se operaba con flujos superiores al crítico en BRMSAn.

En una segunda fase, la imposición de un flujo de permeado inferior a 10 L/hm2, concretamente 7 L/hm2 permitió un ligero aumento de las duraciones de los ciclos de filtración a 4,5 min, tal y como se observa en la Figura 4. En paralelo, la PTM0 descendió por debajo de 10 kPa (Fig. 5) lo que puede asociarse al transporte de materia como consecuencia de fenómenos de difusión tanto browniana como a la inducida por la acción de la cizalladura y fuerzas ascendentes de inercia, que se oponen al transporte de partículas hacia la superficie de la membrana y que originan el flujo de permeado de la membrana (Tardieu *et al.*, 1998).

Por último, se ha procedido a estudiar el efecto del flujo de retrolavado, disminuyendo el mismo de 60 L/hm2 hasta 45 L/hm2, operando a flujo de permeado de 7 L/hm2 en el BRMAn1 (Fig. 4). Bajo estas condiciones, la PTM0 se incrementó en 7 unidades hasta situarse en torno a valores de 15 kPa, lo que se tradujo en ciclos de filtración más cortos, de 4 min. Estos resultados evidencian la importancia del retrolavado sobre la construcción del ensuciamiento residual y son consistentes con los obtenidos por Hwang *et al.* (2009) y Raffien *et al.* (2012), quienes observaron que tanto un aumento del flujo como de la frecuencia de retrolavado conducía a membranas más limpias y con un menor grado de ensuciamiento irreversible.



Fig. 4: Duración de los ciclos de filtración obtenidos al operar diferentes flujos de filtración y retrolavado en BRMAn₁ (PTM_C=50 kPa, v_{AGITACIÓN}=300 rpm).



Fig. 5: Evolución de la PTM_0 obtenidos al operar diferentes flujos de filtración y retrolavado en $BRMAn_1$ ($PTM_C=50$ kPa, $v_{AGITACIÓN}=300$ rpm).

Influencia de la gasificación sobre el ensuciamiento de la membrana

Los resultados del estudio comparativo realizado en el reactor $BRMAn_2$, una vez alcanzado el régimen estacionario (250 h de operación), entre dos modos de gasificación al mismo caudal de gas (1 L/min), intermitente (10 s on / 15 s off) y continua se muestran en la Figura 6. El resto de variables de operación se establecieron en: $J_P=7$

 L/hm^2 , $J_R=45 L/hm^2$, $PTM_C=50$ kPa, $v_{AGITACIÓN}=300$ rpm. La Figura 6a muestra que un aumento de la frecuencia de gasificación contribuye al ligero incremento de la duración de los ciclos de filtración, posiblemente debido a un mayor esfuerzo de cizalladura en las proximidades de la superficie de la membrana que obliga a que el transporte de materia hacia la misma sea más lento (Cui *et al.*, 2003). No obstante, el aumento de la duración de los ciclos (20 s) no ha implicado una mejoría significativa a posteriori, de la operación. De hecho, la PTM₀ no se vio afectada con el cambio en el régimen de gasificación (Fig. 6b) indicando que una vez alcanzado el estado estacionario un aumento de la gasificación no afecta a la fracción de ensuciamiento irreversible ya construida en la membrana. Estudios previos han demostrado que el burbujeo de gas mejora el proceso de filtración ya que las partículas encuentran mayor dificultad a la hora de depositarse sobre la membrana (Ye *et al.*, 2014). Sin embargo, otros autores han observado que existe un valor umbral de la frecuencia de gasificación por encima del cual no se logra una mejora significativa de las condiciones de filtración (Ueda *et al.*, 1997), lo que podría estar en consonancia con los resultados obtenidos en el presente estudio.



Fig. 6: Efecto de los modos de gasificación (intermitente y continua) sobre la duración de los ciclos de filtración (a) y la construcción del ensuciamiento irreversible (b) en el reactor BRMAn₂ (J_P=7 L/hm², J_r=45 L/hm², PTM_C=50 kPa, v_{AGITACIÓN}=300 rpm).

Los resultados obtenidos al operar los BRMAns en ensayos de larga duración y el correspondiente a la determinación del flujo crítico, de corta duración, revelan comportamientos diferentes en cuanto al ensuciamiento de la membrana y su naturaleza si bien, el flujo sostenible parece encontrarse en ambos casos por debajo de 10 L/hm². Esta discrepancia, aunque parcial, pone de manifiesto la importancia de realizar ensayos de larga duración en los que el ensuciamiento consolidado que afecta de manera significativa a la

operación de la membrana pueda ser evaluado y caracterizado de forma más completa, preferiblemente por medio de métodos no invasivos.

Evolución de la composición del biogás en un biorreactor anaerobio de membranas como consecuencia de la digestión anaerobia.

Como ya se ha indicado en la introducción, una de las principales ventajas de los biorreactores de membrana anaerobios frente a los aerobios radica en la producción de biogás (Skouteris *et al.*, 2012), cuya producción depende de la estabilidad del reactor, la cual puede ser seguida y controlada por medio de la acidificación de la suspensión o licor mezcla. El ratio entre las alcalinidades parcial, AI y total, AT está considerado por varios autores como un parámetro indicativo de la cantidad de ácidos grasos volátiles (AGVs) generados en los procesos de digestión anaerobia y cuyo valor no debe exceder 0,3 para evitar problemas de acidificación de la suspensiones (Soto *et al.*, 1993). En el presente estudio, el ratio medio de alcalinidades de la suspensión anaerobia del reactor BRMAn₂ durante el ensayo de larga duración discutido anteriormente (Fig. 6) ha sido 0,128±0,046, y por tanto la generación de AGVs no se ha visto favorecida. El seguimiento de la composición del biogás producido en dicho biorreactor muestra que si bien en los primeros días del ensayo la cámara de gas del biorreactor estaba formada principalmente por aire, al cabo de casi 2 semanas de operación, este ha sido desplazado por el biogás generado por la acción de los microorganismos metanogénicos. De hecho tras 25 días de operación, la composición relativa de metano y dióxido de carbono en el gas presente en la cámara del reactor alcanzó el 60 y 15%, respectivamente, disminuyendo notablemente los porcentajes de oxígeno y nitrógeno registrados (Fig. 7).



Fig. 7: Evolución de la composición de biogás en el biorreactor de membranas anaerobio (BRMSAn₂) ($J_P=7 L/hm^2$, $J_R=45 L/hm^2$, $PTM_C=50 kPa$, $v_{AGITACIÓN}=300 rpm y gasificación continua$).

Comparación de la filtración en régimen aerobio y anaerobio

Con el fin de evaluar la influencia del régimen aerobio y anaerobio sobre la operación de los biorreactores de membrana, se realizaron ensayos a largo plazo operando bajo las mismas condiciones en biorreactores de membrana idénticos entre sí, según el esquema descrito en el apartado Unidad experimental de "Materiales y Métodos" de este trabajo. La única diferencia entre ambas instalaciones ha sido que en un caso se ha recirculado biogás para gasificar la membrana y en el otro se ha gasificado con aire. Las membranas ZW-1 han sido similares,

con resistencias de membrana, R_m, 1,32E+12 m⁻¹ en el caso del reactor anaerobio y 1,42E+12 m⁻¹ en el reactor aerobio. Las condiciones de operación establecidas han sido: $J_P=7$ L/hm², $J_R=45$ L/hm², PTM_C=50 kPa, v_{AGITACIÓN}=300 rpm y gasificación continua.

Las características de la suspensiones o licores mezcla de cada reactor se resumen en la Tabla 3. Como se observa en dicha tabla tanto la suspensión anaerobia como la suspensión empleada en el reactor aerobio, que procedía de la línea de recirculación del reactor de lodos activos de la EDAR de Santa Cruz de Tenerife presentaban en el momento de inicio de los ensayos, una concentración de SST_{LM} próxima a 4 g/L (Tabla 3). Las fracciones particulada y coloidal-soluble de ambos licores mezclas mostraron valores similares, si bien los TTF de ambos son significativamente diferentes, requiriéndose más tiempo para filtrar un mismo volumen en el caso anaerobio que en el aerobio. La suspensión aerobia también presentó mayor número de partículas floculadas, en consonancia con resultados previos de otros autores que ponen de manifiesto la mayor facilidad que presentan las partículas para formar flóculos en condiciones aerobias frente a condiciones anóxicas o anaerobias (Wilén *et al.*, 2000), y el hecho de que las partículas finas son causantes de un ensuciamiento más rápido (Jin *et al.*, 2006).

Tabla 3: Características de los licores mezclas de los biorreactores anaerobio (BRMAn₂) y aerobio (BRMAe), al inicio del estudio

Parámetro	Unidades	LM _{BRMSAn2}	LM _{BRMSAe}
SST	mg/L	4227	3731
SSV	mg/L	3682	3231
DQO _T	mg/L	8300	6200
DQO _s	mg/L	104,7	162
TTF	min	2,25	0,28
No floculados	NTU	594	43,75



Fig. 8: Comparación entre los ciclos de filtración de reactores aerobio y anaerobio en términos de duración del ciclo de filtración (J_P=7 L/hm², J_R=45 L/hm², PTM_C=50 kPa, v_{AGITACIÓN}=300 rpm y gasificación continua).
En ventana interior: (Evolución temporal de la PTM para un ciclo de filtración, una vez alcanzado el estado estacionario)

La Figura 8 muestra la evolución de la duración de los ciclos de filtración en ambos biorreactores. Como se puede observar la duración de los ciclos descendió a lo largo del ensayo para los dos reactores, pero este descenso resultó más brusco en el caso del reactor anaerobio, que tras 36 horas de operación se situó en 4 minutos de duración. En el caso del biorreactor aerobio, los ciclos de filtración de 4 minutos se registraron a partir de 150 horas de operación. No obstante, es importante destacar el hecho de que una vez alcanzado el estado estacionario, tanto la duración del ciclo de filtración como la evolución de la presión transmembrana en cada ciclo han sido similares (Figura 8 y ventana interior).

En cuanto a la evolución de la PTM0 en ambos reactores, ambos presentaron comportamientos muy similares, en los que se pueden distinguir dos etapas: en las primeras 36 horas se ha producido una construcción muy rápida del ensuciamiento irreversible para posteriormente, alcanzarse un estado pseudo-estacionario en la que el ensuciamiento ha seguido aumentando de forma menos acusada (Fig. 9). En el estado pseudo-estacionario, las diferencias de PTM0 registradas, 6-9 kPa para el aerobio y 9-13 kPa para el anaerobio, y por extensión las diferencias en cuanto a ensuciamiento irreversible no parecen justificar por si solo la diferencia observada en la duración de ciclos en ambas unidades. Estas diferencias han de estar vinculadas a los diferentes mecanismos de construcción del ensuciamiento asociadas a las diferentes características de ambos licores mezcla, que requieren de estudios más profundos.



Fig. 9: Comparación entre la evolución de la PTM_0 en reactores aerobio (BRMSAe) y anaerobio (BRMSAn₂) (J_P=7 L/hm², J_R=45 L/hm², PTM_C=50 kPa, v_{AGITACIÓN}=300 rpm y gasificación continua).

CONCLUSIONES

 Los biorreactores de membrana (BRM) anaerobios evaluados a escala laboratorio, permitieron degradar eficazmente la materia orgánica presente en aguas residuales domésticas, produciéndose biogás con una composición relativa en metano del 60% al cabo de 25 días, operando a temperatura ambiente.

- El flujo sostenible de la membrana para este sistema se ha establecido en torno a 7 L/hm². El flujo de retrolavado a 60 L/hm² puede ser un medio eficaz para eliminar el ensuciamiento reversible de la membrana, incluso operando con gasificación intermitente (10 s on / 15 s off) y no continua pero a mediolargo plazo la construcción del ensuciamiento de carácter irreversible obliga a limpiezas químicas.
- La discrepancias observadas en cuanto al ensuciamiento y su naturaleza en ensayos de corta y larga duración ponen de manifiesto la importancia de realizar ensayos largos en los que el ensuciamiento consolidado que afecta de manera significativa a la operación de la membrana, más similar al obtenido a escala industrial, pueda ser evaluado y caracterizado de forma más completa.
- La filtración en reactores de membrana anaerobios y aerobios parece ajustarse a un comportamiento similar una vez se alcanza el estado estacionario, si bien la suspensión aerobia ha presentado una evolución en la construcción del ensuciamiento más estable.

AGRADECIMIENTOS

A Ministerio de Economía y Competitividad del Gobierno de España, la financiación recibida a través del proyecto de investigación CTM2011-27307, al Laboratorio de Análisis de Aguas del Departamento de Ingeniería Química y Tecnología Farmacéutica de la Universidad de La Laguna, la colaboración en el desarrollo del trabajo analítico y a las empresas CANARAGUA y EMMASA, el suministro de las suspensiones inoculadas, así como el apoyo recibido de GE Water & Process Technologies.

REFERENCIAS

1. American Public Health Association (APHA). (2005) Standard methods for the examination of water and wastewater. APHA, Washington, DC.

2. BOE (2007). Boletín Oficial del Estado, Real Decreto 1620/2007, de 7 diciembre por el que se establece el régimen jurídico de la reutilización de las aguas depuradas. Nº294 de 8 diciembre 2007, España.

3. Chan, Y.J., Chong, M.F., Law, C.L. & Hassell, D.G. (2009). A review on anaerobic–aerobic treatment of industrial and municipal wastewater. *Chemical Engineering Journal, 155*, 1-18.

4. Cui, Z.F., Chang, S. & Fane, A.G. (2003) The use of bubbles to enhance membrane processes. *Journal of Membrane Science, 221*, 1-35.

5. Drews, A. (2010) Membrane fouling in membrane bioreactors—Characterisation, contradictions, causes and cures, *Journal of Membrane Science, 363,* 1–28.

6. Esteban, R.I., de Miguel, E.O., Martínez, M.A., Andreu, P.S., Bouyat, L.M., García, E., *et al.* (2012). Avances en el diseño y la operación de los biorreactores de membrana: La experiencia española. *Ingeniería Civil, 168*, 21-31.

7. Foresti, E. (2001). *Anaerobic treatment of domestic sewage: established technologies and perspectives*. Proc. of the 9th World Congress on Anaerobic Digestion–Anaerobic Conversion for Sustainability, 2001, 37-42.

8. Ho, J. & Sung, S. (2009). Anaerobic Membrane Bioreactor Treatment of Synthetic Municipal Wastewater at Ambient Temperature. *Water Environment Research, 81*, 922-928.

9. Hwang, K.-J., Chan, C.-S. & Tung, K.-L. (2009). Effect of backwash on the performance of submerged membrane filtration. *Journal of Membrane Science, 330*, 349-356.

10. 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.

11. Jin, Y.L., Lee, W.-N., Lee, C.-H., Chang, I.S., Huang, X. & Swaminathan, T. (2006). Effect of DO concentration on biofilm structure and membrane filterability in submerged membrane bioreactor. *Water Research, 40*, 2829-2836.

12. Judd, S. (2010). The MBR Book: Principles and Applications of Membrane Bioreactors for Water and Wastewater Treatment. Butterworth-Heinemann, Oxford.

13. Le-Clech, P., Jefferson, B., Chang, I. & Judd, S. (2003). Critical flux determination by the flux-step method in a submerged membrane bioreactor. *Journal of Membrane Science, 227*, 83-91.

14. Lin, H.J., Xie, K., Mahendran, B., Bagley, D.M., Leung, K.T., Liss, S.N., *et al.* (2010). Factors affecting sludge cake formation in a submerged anaerobic membrane bioreactor. *Journal of Membrane Science, 361*, 126-134.

15. Ng, S.H. (2005). Membrane bioreactor operation at short solids retention times: performance and biomass characteristics. *Water Research, 39*, 981–992.

16. Ozgun, H., Dereli, R.K., Ersahin, M.E., Kinaci, C., Spanjers, H. & van Lier, J.B. (2013). A review of anaerobic membrane bioreactors for municipal wastewater treatment: Integration options, limitations and expectations. *Separation and Purification Technology*, *118*, 89–104.

17. Raffin, M., Germain, E. & Judd, S.J. (2012). Influence of backwashing, flux and temperature on microfiltration for wastewater reuse. *Separation and Purification Technology*, *96*, 147-153.

18. Robles, A., Ruano, M.V., Ribes J. & Ferrer, J. (2013). Factors that affect the permeability of commercial hollow-fibre membranes in a submerged anaerobic MBR (HF-SAnMBR) system, *Water Research, 47*, 1277-1288.

19. Stuckey, D. (2012). Review: Recent developments in anaerobic membrane reactors, *Bioresource Technology*, *122*, 137-148.

20. Tardieu, E., Grasmick, A., Geaugey, V. & Manem, J. (1998). Hydrodynamic control of bioparticle deposition in a MBR applied to wastewater treatment. *Journal of Membrane Science*, *147*(1), 1-12.

21. Ueda, T., Hata, K., Kikuoka, Y. & Seino, O. (1997). Effects of aeration on suction pressure in a submerged membrane bioreactor. *Water Research, 31*, 489-494.

22. Skouteris, G., Hermosilla, D., López, P., Negro, C. & Blanco, A. (2012). Anaerobic membrane bioreactors for wastewater treatment: A review. *Chemical Engineering Journal, 198–199,* 138-148.

23. Smith, A.L., Stadler, L.B., Love, N.G., Skerlos, S.J. & Raskin, L. (2012). Perspectives on anaerobic membrane bioreactor treatment of domestic wastewater: A critical review. *Bioresource Technology*, *122*, 149-159.

24. Soto, M., Méndez, R. & Lema, J. (1993). Methanogenic and non-methanogenic activity tests. Theoretical basis and experimental set-up. *Water Research, 27*, 1361-1376.

25. Vera, L., González, E., Díaz, O. & Delgado, S. (2014). Performance of a tertiary submerged membrane bioreactor operated at supra-critical fluxes. *Journal of Membrane Science*, *457*, 1-8.

26. Wilén, B.-M., Keiding, K. & Nielsen, P.H. (2000). Anaerobic deflocculation and aerobic reflocculation of activated sludge. *Water Research, 34*, 3933-3942.

27. Ye, D., Saadat-Sanei, S. & Bérubé, P.R. (2014). Pulse bubble sparging for the control of hydraulically reversible fouling in submerged hollow fiber membrane systems. *Separation and Purification Technology*, *123*, 153–163.