

Tuzlu Suda Metan Hidrat Oluşum Koşullarının Tahmini için Regresyon Algoritmalarının Karşılaştırmalı Analizi

Sema DEMİRCİ UZUN^{1*}, Aytuğ ONAN², Vahide BULUT³

¹Katip Çelebi Üniversitesi, Mühendislik-Mimarlık Fakültesi, Mühendislik Bilimleri Bölümü, 35620, İzmir

²Katip Çelebi Üniversitesi, Mühendislik-Mimarlık Fakültesi, Bilgisayar Mühendisliği Bölümü, 35620, İzmir

³Katip Çelebi Üniversitesi, Mühendislik-Mimarlık Fakültesi, Mühendislik Bilimleri Bölümü, 35620, İzmir

¹<https://orcid.org/0000-0002-6445-5464>

²<https://orcid.org/0000-0002-9434-5880>

³<https://orcid.org/0000-0002-0786-8860>

*Sorumlu yazar: semademirci.uzun@ikcu.edu.tr

Araştırma Makalesi

ÖZ

Makale Tarihi:

Geliş tarihi: 13.05.2022

Kabul tarihi: 21.05.2024

Online Yayınlanma: 10.12.2024

Anahtar Kelimeler:

Metan hidrat

Oluşum koşulları

Kemoinformatik

Makine öğrenmesi

Petrol ve gaz borularında hidrat oluşumu; akış sürekliliği için en önemli faktörlerden biridir. Hidrat oluşumu, boruların tıkanmasına yol açabildiği gibi güvenlik ve ekonomik açıdan da sorunlara neden olabilmektedir. Bu nedenle, hidrat oluşum ve bozunma koşullarının belirlenmesi ve analizi önemli bir araştırma problemidir. Bu amaçla, geleneksel kimyasal deneylere ve analizlere dayalı birçok çalışma gerçekleştirilmiştir. Doğal gaz hidrat oluşum ve bozunma mekanizması üzerindeki çevre koşullarının etkisinin karmaşık yapısı; yüksek başarımlı hidrat oluşum koşulu tahmin ve analiz yöntemleri geliştirmek için makine öğrenmesi algoritmalarının kullanımını uygun kılmaktadır. Bu çalışma kapsamında, doğrusal regresyon, karar ağacı, destek vektör makineleri, Gauss süreç regresyonu algoritmalarına dayalı on sekiz temel makine öğrenmesi algoritmasının etkinliği, tuzlu suda metan hidrat oluşum sıcaklığının basınca ve iyon konsantrasyonlarına dayalı özneliklere bağlı olarak belirlenmesi için değerlendirilmektedir. Deneysel analizlerde kullanılan regresyon modelleri incelendiğinde, Gauss süreç regresyonu tabanlı algoritmaların R-kare ölçütü bakımından, analizlerde kullanılan diğer yöntemlere kıyasla daha yüksek başarımlı elde ettiği görülmektedir. Karşılaştırmalı analizde dikkate alınan tüm konfigürasyonlar arasında en başarılı sonuçlar, hem ortalama mutlak hata (RMSE= 0,9517), hem ortalama kare hatası (MSE=0,9058) hem de R-kare ölçütü (R-kare=0,99) cinsinden rasyonel ikinci dereceden Gauss süreç regresyonu algoritması ile elde edilmektedir.

Comparative Analysis of Regression Algorithms for Prediction of Methane Hydrate Formation Conditions in Salt Water

Research Article

ABSTRACT

Article History:

Received: 13.05.2022

Accepted: 21.05.2024

Published online: 10.12.2024

Keywords:

Methane hydrate

Formation conditions

Chemoinformatics

Machine learning

One of the most critical issues affecting flow continuity in oil and gas pipelines is hydrate formation. Hydrate formation can cause pipe clogging, which can be hazardous to both safety and the economy. As a result, determining and analyzing hydrate formation and degradation conditions is a critical scientific challenge. Many research based on conventional chemical tests and analyses have been conducted for this goal. Because of the complexity of the impacts of environmental variables on natural gas hydrate formation and degradation mechanisms, machine learning techniques are an appropriate choice for developing hydrate formation condition prediction and analysis approaches with high predictive performance. The efficiency of eighteen basic machine learning algorithms based on linear regression, decision trees, support vector

machines, and Gaussian process regression algorithms is evaluated in this study to determine the methane hydrate formation temperature in brine based on pressure and ion concentration features. When the regression models used in the experimental analyses are examined, it is found that the Gaussian process regression-based algorithms outperform the other methods utilized in the analysis in terms of the R-square criterion. The rational quadratic Gaussian process regression produced the best results in terms of mean absolute error (RMSE= 0.9517), mean square error (MSE=0.9058), and R-squared measure (R-squared=0.99) among all the configurations included in the comparative study.

To Cite: Demirci Uzun S., Onan A., Bulut V. Tuzlu Suda Metan Hidrat Oluşum Koşullarının Tahmini için Regresyon Algoritmalarının Karşılaştırmalı Analizi. *Osmaniye Korkut Ata Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Dergisi* 2024; 7(5): 2065-2083.

1. Giriş

Doğal gaz; yanması sırasında oluşan düşük miktardaki karbondioksit gazı emisyonuna bağlı olarak diğer fosil yakıtlarla karşılaştırıldığında çok daha temiz bir enerji kaynağıdır. Bu durum da dikkate alınarak dünya genelinde en çok ısı ve elektrik enerjisi üretiminde kullanılmaktadır. Bunun yanı sıra, çeşitli araçlar için yakıt olarak kullanılmakla birlikte başta plastikler olmak üzere bazı son derece önemli organik bileşiklerin üretiminde ana hammaddelerden birini oluşturmaktadır. Amerika Birleşik Devletleri Enerji Bilgi İdaresi (EIA) 2020 yılı verilerine göre, Dünya genelindeki doğal gaz kaynaklarının 250000'den 700000 trilyon fit küpe kadar olduğu tahmin edilmekte ve 2020-2025 yılları arasında yıllık doğal gaz ihtiyacının her yıl için %1,9 oranında artması beklenmektedir (EIA, 2020). Bu rakamlarla dünya genelinde tüm doğal gaz rezervlerindeki karbon içeriğinin diğer yaygın olarak kullanılan tüm fosil yakıtlardakinin yaklaşık iki katı kadar olduğu düşünülmektedir (Dendy Sloan ve Koh, 2007; Walsh ve ark., 2009). Artan bu talebin karşılanmasında, mevcut doğal gazın kaynaklardan son kullanıcıya nakli ve depolanma yöntemleri son derece önem taşımaktadır. Bu amaçlar için kullanılan yöntemlerden en yaygın olanları sıkıştırılmış doğal gaz (CDG) şeklinde depolanıp sıvılaştırılmış doğal gaz (LNG) olarak boru hatlarında taşınmalarıdır (Sapag ve ark., 2010). Ancak, her iki yöntemin de bazı dezavantajları mevcuttur. CNG yönteminde doğal gaz 20-25 MPa basınç civarında sıkıştırıldığından kalın duvarlı ve çok ağır depolama tanklarına ihtiyaç duyulmaktadır. LNG yönteminde ise sıvı doğal gazın oluşturulabilmesi için sistem sıcaklığını 191 K'in altında tutabilecek bir soğutma sistemi gerekmektedir (Wang ve ark., 2010; Inkong ve Yodpetch, 2022). Son dönemlerde, bu sorunları elimine edebilmek için doğal gazın katı halde taşınıp depolanmasını sağlayan katılaştırılmış doğal gaz (SNG) adlı yöntem uygulanmaya başlanmıştır. Bu yöntemde doğal gaz, katı hidrat formun içine hapsedilmiş durumdadır. Böylelikle SNG; yüksek hacimli enerji depolama kapasitesi, patlama açısından güvenli oluşu, kolayca işlenebilmesi, kolay geri dönüşümü ve maliyet avantajı gibi özellikleriyle diğer yaygın yöntemlere göre üstünlük göstermektedir (Veluswamy ve ark., 2018; Bhattacharjee ve ark., 2020).

Doğal gaz hidratları, uygun basınç (10 atm) ve sıcaklık (0 °C) koşullarında katı su latisleri tarafından sarılmış doğal gaz moleküllerinden oluşan klatrat kristal bileşiklerdir (Sloan ve Koh, 2007). Stökiyometrik bir orana bağlı olmaksızın küçük gaz molekülleri hidrojen bağları yardımıyla katı su moleküllerinden oluşan bir kafesin içerisine hapsedilmiş durumdadırlar. İçerdikleri su molekülü sayısına

bağlı olarak hidratlar farklı kristal yapılarına sahip olabilirler. Bir gaz hidratın hacmi içerdiği gaz moleküllerinin sayısına ve hidrat oluşum koşullarına bağlı olarak değişiklik göstermektedir. Yüksek depolama kapasitesi ve güvenli yapısı ile doğal gaz depolanması ve transferinde büyük öneme sahiptirler (Gudmundsen ve Borrehaug, 1996; Yevi ve Rogers, 1996). Çoğunlukla deniz kara sınırlarındaki tortularda ve sürekli don alanlarında özellikle de arktik bölgelerde yaygın bir şekilde bulunmaktadır. Atmosfer ve okyanus suyunun ısınmasıyla hidrat formun kararlılığı düşerek yapısındaki metan gazı tortu ve toprağa sızmaya başlamaktadır. Yeryüzüne çıkarıldıklarında ise standart basınç ve sıcaklıkta 1 metreküp gaz hidrat ortalama 164 metreküp doğal gaz salınımı yapmaktadır.

Hidrat oluşumunu etkileyen başta sıcaklık ve basınç olmak üzere birçok parametre mevcuttur. Örneğin; hidrat tutunması için hidratlar ve boru hattı duvarlarındaki adhezyon kuvvetleri, serbest su fazının varlığı, akış modeli ve sıvı akış hızı gibi parametreler de önem taşımaktadır. Serbest su fazı yoksa hidratlar ve boru duvarlarındaki adhezyon kuvvetleri küçüktür ve bu durumda hidratlar genel olarak boru hatları içerisinde tutunamazlar (Wang ve ark., 2016). Literatürde, gaz hidrat oluşum mekanizmalarına yönelik tahminleme çalışmalarında gaz akış hızı ve adhezyon kuvvetleri vb. parametreleri de inceleyen modeller mevcuttur (Wang ve ark., 2016; Alireza, 2020).

Diğer yandan, petrolde ve gaz borularında hidrat oluşumu akış sürekliliği için en önemli zorluklardan biridir (Walsh ve ark., 2009). Boruların tıkanmasına neden olarak akışı önlemekte ve hem ekonomik kayba hem de güvenlik sorunlarına sebep olmaktadır. Bu sorunu önlemek için hidrat oluşum ve bozunma koşullarını belirlemek ve yorumlamak oldukça önemlidir.

Genellikle yapılan çalışmalarda, termodinamik hidrat inhibitörü olarak inorganik tuzlar ve alkol katkı maddesi kullanılmaktadır (Sloan ve Koh, 2007). Bu bağlamda literatürde, inorganik tuzların hidrat oluşum ve bozunma dengesine etkilerini içeren birçok çalışma yer almaktadır (Hammerschmidt, 1934; Jiafang ve ark., 2021). Gerçekleştirilen çoğu çalışma, derişik tuz çözeltilerinin hidrat faz dengesine etkilerini göstermek üzere gerçekleştirilmiştir. Bu çalışmalara göre, çözeltideki tuzlar hidrat oluşma koşullarını düşük sıcaklık ve yüksek basınç bölgesine çekmektedirler. Bazı çalışmalarda ise farklı tuz iyonlarının hidrat inhibisyonuna olan etkileri araştırılmıştır (Hammerschmidt, 1934; Lu ve ark., 2001; Sabil ve ark., 2010; Wang ve ark., 2016; Lv ve ark., 2018; Sun ve ark., 2018). Dholabhai ve ark. (1993) NaCl ve KCl varlığında metan hidrat oluşumunun kinetiğini araştırmış ve bu tuzların varlığında metan hidrat oluşum hızının saf sudakine göre önemli ölçüde azaldığını bulmuşlardır (Dholabhai ve ark., 1993). Kumar ve ark. (2019) ise tetrahidrofur (THF) varlığında NaCl çözeltilisinin termodinamik dengeye etkisini tespit etmeye yönelik çalışmalar gerçekleştirilerek tuz varlığının basınç üzerine negatif etkisi sonucu metan-THF hidrat oluşumuna yardımcı olduğunu tespit etmişlerdir (Pandey ve ark., 2019; Veluswamy ve ark., 2019). Literatürde yapılan deneysel çalışmaların yanı sıra, tuz varlığında hidrat oluşum ve bozunma koşullarını araştıran birçok tahmin ya da hibrit çalışma da gerçekleştirilmiştir. Tuz çözeltilerindeki hidrat dengesi üzerine yapılan tahmin çalışmaları genel olarak Van der Waals, Platteeuw (Van der Waals ve ark., 1959; Ng ve Robinson, 1977; John ve ark., 1985) ve Chen-Guo (Chen ve Guo, 1998) modellerini içermektedir.

Guo Tianmin ve Chen Guangjin (1998) istatistiksel mekaniğe dayanan hidrat oluşumunun termodinamik bir modelini önermişlerdir. Temel olarak hidratın çekirdeklenme sürecinde aynı anda gerçekleşen iki kinetik süreç vardır:

- 1- Gaz molekülü; kimyasal bir formül ile gösterilebilen stökiyometrik basit hidrat bileşiğini oluşturmak üzere su ile kompleksleşir.
- 2- Basit hidrat moleküllerindeki gaz ve suyun daha küçük gaz moleküllerini absorblaması ile oluşan boşluk kavitesinin varlığı stökiyometrik olmayan hidrat oluşumuna sebep olur.

Böylece, basit hidrat karışımının ideal çözelti olduğunu kabul ederek Guo ve ark. (1998) Doğal gaz sistemlerindeki temel denge ilişkisini kurmuştur:

$$f_i = X_i f_i^0 (1 - \sum_j \theta_j)^\alpha \quad (1)$$

f_i , gaz fazındaki i bileşenin uçuculuğu, x_i i bileşenin basit hidrat yapısındaki hidratın mol fraksiyonu, α ise hidrat yapısı ile ilişkilidir. Hidrat yapısı I. tip olduğunda $1/3$; hidrat yapısı II. tip olduğunda bu değer 2 dir.

θ_j , basit hidrat yapılarının kavitelerindeki küçük gaz moleküllerinin j doluluk oranını temsil etmektedir. Bu oran doğrudan Eşitlik (2) ile hesaplanabilir:

$$\theta_i = \frac{C_i f_i}{1 + \sum_j C_j f_j} \quad (2)$$

Burada C_i küçük gaz bileşenlerinin i Langmuir sabitidir ve Eşitlik (3) ile ifade edilir:

$$C_i = X_i \exp\left(\frac{Y_i}{T - Z_i}\right) \quad (3)$$

f_i^0 i bileşeninden oluşmuş basit hidrat bileşiklerinin uçuculuğudur ve Eşitlik (4) ile hesaplanır:

$$f_i^0 = \exp\left(\frac{-\sum_j A_{ij} \theta_j}{T}\right) \left[a_i \exp\left(\frac{b_i}{T - c_i}\right) \right] \exp\left(\frac{\beta P}{T}\right) a_\omega^{1/\lambda_2} \quad (4)$$

A_{ij} tip II hidrat sistemlerinin ikincil etkileşim sabitidir, tip I hidratların ikincil etkileşim sabiti çok küçük olduğundan ihmal edilebilir. Modeldeki a_i , b_i ve c_i parametreleri ile β ve λ_2 parametreleri hidrat yapısının tipine bağlıdır. Tip I ise β 4.242 K/MPa ve λ_2 3/23; tip II ise β 10.224 K/MPa ve λ_2 1/17; a_ω suyun aktivitesidir. Tüm bu parametreler hesaplanıp denklem 7'de yerine koyulduğunda bileşenlerin mol fraksiyonu toplamının 1 olduğu durumda hidrat oluşum parametreleri tahmin edilebilir. Bu analize dayanılarak verilen basınç değeri için hidrat yapısının oluşma sıcaklığı tahminlenebilir. Benzer şekilde

sıcaklık değeri bilindiğinde doğal gaz hidrat oluşumu için basınç tahminlemesi yapılabilmektedir (Zuo ve ark., 2021).

Bu modeller daha sonrasında Parrish-Prausnitz (1972), Nagata, Ng-Robinson (1977) vd. tarafından modifiye edilerek geliştirilmiştir (Ng ve Robinson, 1977). Bu termodinamik modeller ilgili sistemlerin faz dengelerini tahmin yeteneğine sahip olsalar da hala sistem parametrelerinin genişletilmesine, çeşitli tuz katkılarının farklı basınç ve sıcaklık gibi parametrelerle birlikte hidrat oluşumuna katkılarının ortaya konulmasına ihtiyaç duyulmaktadır. Bu uygun parametreleri deneysel olarak bulmak ve bunların doğru bir şekilde elde edilip türetildiğini denetlemek genellikle zor ve oldukça maliyetlidir. Bu gibi sebeplerle, son yıllarda gittikçe artan ilgiye sahip ve oldukça temel bir araştırma konusu haline dönüşmeye başlayan yapay zekâ uygulamalarının bu tür etkin parametrelerin bulunması ve yorumlanmasında önemi ve gerekliliği ortaya çıkmıştır. Kimya alanında çalışan bilim insanları, çoğunlukla tasarladıkları kimya problemlerini çözmek için laboratuvar ortamında çeşitli deneyler planlamakta ve kullanılacak verilerin elde edilmesi amacıyla gerek zaman gerekse iş gücü ve sarf malzeme/makine-teçhizat maliyetlerini karşılayabilme açısından oldukça yoğun çaba göstermek durumundadırlar. Bu gibi sebeplerle, 1960lı yıllardan günümüze kadar kimyanın bazı temel problemlerini çözmek amacıyla çeşitli bilgisayar programları geliştirilerek toplanan verilerin bilgiye dönüştürülmesi süreci kolaylaştırılmaya çalışılmıştır. Bu aşamada, maddelerin kimyasal, fiziksel ya da biyolojik özelliklerini tahmin etmeye, organik sentez yöntemleri geliştirmeye ve molekül yapılarını aydınlatmaya yönelik çeşitli metotlar geliştirilmiştir. Böylelikle, bu yaklaşım kendi içinde bir disiplin olan kemoinformatiğin ortaya çıkıp gelişmesini sağlamıştır (Gasteiger, 2020). Günümüzde ise kemoinformatik, son yılların artan öneme sahip konusu yapay zekâ yaklaşımını verilerin kimyasal bilgiye dönüştürülmesinde yaygın olarak kullanmaya başlamıştır. Yapay zekâ yaklaşımı ve özellikle makine öğrenmesi/derin öğrenme çoğunlukla ilaç geliştirme, analitik kimya, organik kimya, tarım kimyası araştırmaları, gıda bilimi, malzeme bilimi ve süreç kontrolü ki kimya problemlerinin çözümünde kullanılmaktadır (Boullart ve ark., 1992; Zupan ve ark., 1994; Anzali ve ark., 2012; Elyashberg ve ark., 2012; Le ve ark., 2012; Schleifer, 2012; Mak ve Pichika, 2019; Technology, 2022). Özetle, doğal gaz hidratlarının oluşma ve bozunma mekanizmasına çevresel koşulların etkisini belirlemek oldukça kompleks bir süreçtir. Bu sebeple belirlenen parametrelerin faz dengesine etkilerinin incelenmesi ve hidrat oluşum koşullarının tahmininde makine öğrenmesi algoritmalarının kullanılması yüksek tahmin doğruluğuna sahip modeller geliştirilmesi potansiyeline sahiptir. Çalışma kapsamında, tuzlu suda metan hidrat oluşum faz dengesini belirlemeye yönelik olarak temel makine öğrenmesi regresyon modellerinin etkinlikleri değerlendirilmektedir. Faz dengesinin belirlenmesinde, NaCl, KCl, CaCl₂ ve MgCl₂ tuzlarının iyonlarının etkisi dikkate alınmaktadır. Çalışmanın geri kalanı şu şekilde yapılandırılmıştır. İkinci bölümde, çalışmada kullanılan veri setinin temel özellikleri, analizlerde kullanılan regresyon algoritmaları sunulmaktadır. Üçüncü bölümde, deneysel süreç, değerlendirme ölçütleri ve deneysel sonuçlar tanıtılmaktadır. Dördüncü bölümde ise çalışmanın temel sonuçlarına değinilmektedir.

2. Materyal ve Metot

Bu bölümde, çalışma kapsamında kullanılan veri seti ve regresyon algoritmaları tanıtılmaktadır.

2.1. Veri Seti

Bu çalışmada, tuzlu suda (NaCl, KCl, CaCl₂ ve MgCl₂ varlığında) metan hidrat oluşum koşullarını değerlendirmek amacıyla 1951'den 2020'ye kadar yayınlanan araştırma çalışmalarındaki 702 deneysel veri örneğinin toplanması ile elde edilen veri seti kullanılmıştır (Xu ve ark., 2021). Toplanan veri örneklerine ilişkin tanımlayıcı istatistiksel bilgiler Tablo 1'de sunulmaktadır. Burada, tuz derişimleri, Cl⁻, Na⁺, K⁺, Ca²⁺ ve Mg²⁺ dâhil olmak üzere her iyon için mol %'sine dönüştürülerek verilmektedir.

Tablo 1. Çalışmada Kullanılan Veri Setine İlişkin Temel Tanımlayıcı İstatistiksel Bilgiler (EIA, 2020)

| Öznitelik | Maksimum | Minimum |
|-------------------------|----------|---------|
| Sıcaklık (K) | 311,95 | 268,54 |
| Basınç (MPa) | 185,6 | 2,92 |
| NaCl (wt%) | 30 | 0 |
| KCl (wt%) | 21,88 | 0 |
| CaCl ₂ (wt%) | 32 | 0 |
| MgCl ₂ (wt%) | 25 | 0 |

2.2. Regresyon Algoritmaları

Bu bölümde, tuzlu suda metan hidrat oluşum sıcaklığının basınca ve iyon konsantasyonlarına dayalı özniteliklere bağlı olarak belirlenmesinde kullanılan temel regresyon algoritmaları tanıtılmaktadır.

Doğrusal regresyon (linear regression), bir ya da daha fazla tahmin değişkeninin bir fonksiyonu olarak sürekli bir yanıt değişkenini belirlemek amacıyla kullanılan temel bir makine öğrenmesi algoritmasıdır.

Doğrusal regresyon ile doğrusal bir model oluşturulur. Burada, yanıt olarak da nitelendirilen bir bağımlı değişken, bir ya da daha fazla bağımsız özniteliğin bir fonksiyonu aracılığıyla belirlenir (Montgomery ve Peck, 2001).

Sağlam doğrusal regresyon (robust linear regression), yinelemeli olarak her bir veri noktasına ağırlıklı en küçük kareler yöntemine dayalı olarak ağırlık değeri atar. Böylelikle, veri setinin küçük bölümlerinde meydana gelen büyük değişikliklere daha az duyarlı bir öğrenme modeli elde edilmiş olur. Sağlam doğrusal regresyon, doğrusal regresyona kıyasla, aykırı değerlere daha az duyarlı bir model oluşturur (Rousseeuw ve Leroy, 2005).

Kademeli doğrusal regresyon (stepwise linear regression) algoritması da, en son regresyon modelinde dikkate alınacak bağımsız değişkenler regresyon modeli adım adım yinelemeli olarak uygulanarak belirlenir. Burada, modeldeki potansiyel değişkenlerin art arda eklenmesi ya da çıkarılması ve her bir yinelemede ilgili değişken seti üzerinde yapılan işlemin istatistiksel anlamlılığının sınanması ile uygun değişken seti elde edilir (Beck, 2017).

Karar ağacı algoritmaları (decision tree algorithms), öğreticili öğrenme problemlerinde kullanılan temel makine öğrenmesi algoritmaları arasında yer almaktadır (Onan, 2015). Karar ağacı algoritmaları hem regresyon hem de sınıflandırma görevlerinde uygulanabilmektedir. Karar ağacı algoritmaları, ağaç yapılı bir öğrenme modeli oluşturur. Burada, kök düğüm tüm örnekleri temsil eden ilk düğümdür ve alt dallara bölünebilir. İç düğümler, veri setinin özniteliklerini, düğümler arası dallar ise karar kurallarını temsil eder. Model ile elde edilen sonuçlar ise yaprak düğümlerde temsil edilir. Karar ağacı modelleri, görsel ve açıklanabilir bir öğrenme modeli oluşturur (Kantardzic, 2011).

Çalışma kapsamında, üç temel karar ağacı regresyon modeli olan ince ağaç, orta ağaç ve kaba ağaç modelleri kullanılmıştır. İnce ağaç modelinde, sınıflar arasında çok sayıda ayırım yapmak amacıyla birçok yaprak düğüm yer alabilmektedir ve maksimum bölme sayısı 100'dür. Orta ağaç modelinde, ağaç yapısında maksimum bölme sayısı 20 olarak alınır. Kaba ağaç modelinde ise maksimum bölme sayısı 4 ile sınırlı tutulur (Gilat, 2008).

Destek vektör makineleri (support vector machines), hem sınıflandırma hem de regresyon problemlerinde uygulanabilen öğreticili öğrenme algoritmaları arasındadır (Kantardzic, 2011). Hem doğrusal hem de doğrusal olmayan problemlerde başarıyla uygulanabilmektedir. Destek vektör makineleri, uygun bir öğrenme modeli oluşturmak amacıyla, veri setindeki örnekleri daha yüksek boyutlu bir uzayda hiperdüzlem kullanarak temsil eder. Böylelikle, iyi bir karar ayırımı yapılması amaçlanır.

Çalışma kapsamında, altı temel destek vektör makinesi modeli olan doğrusal SVM, ikinci dereceden SVM, ince Gauss SVM, orta Gauss SVM ve kaba Gauss SVM modelleri dikkate alınmıştır (Gilat, 2008). Topluluk yöntemleri (ensemble methods), bir dizi zayıf öğrenme algoritmasından (temel öğrenenler) alınan kararları birleştirmeyi amaçlar, böylece elde edilen öğrenme modelinin doğruluğu ve sağlamlığı geliştirilebilir. Topluluk yöntemlerinin genelleme yeteneği, tek temel öğrenenlere göre daha iyidir (Onan ve ark., 2016).

Çalışma kapsamında, iki topluluk yöntemi olan önyükleme ile birleştirilmiş karar ağaçları ve güçlendirilmiş karar ağaçları modelleri kullanılmaktadır. Önyüklemeli karar ağaçları, tek bir karar ağacı kullanılmasında ortaya çıkabilecek aşırı öğrenme ve düşük genelleştirme yeteneğini ortadan kaldırmak amacıyla birden fazla karar ağacının sonucunu birleştiren bir öğrenme modelidir. Burada, verilerin önyükleme örnekleri kullanılarak, toplulukta yer alan karar ağaçları oluşturulur. Güçlendirilmiş karar ağaçları modeli, karar ağacı öğrenme algoritmalarını AdaBoost topluluk yöntemi ile birleştiren bir modeldir (Gilat, 2008).

Gauss süreç regresyonu (Gaussian process regression) algoritması (GPR), öğrenme modelini oluşturmak için az sayıda parametreye dayanan, yüksek başarımlı makine öğrenmesi algoritmaları arasındadır. GPR, oldukça az sayıda verinin varlığında dahi etkin sonuçlar alabilen bir öğrenme algoritmasıdır (Sloan ve Koh, 2007). Çalışma kapsamında, kare üstel GPR, matern 5/2 GPR, üstel GPR ve rasyonel ikinci dereceden GPR modelleri kullanılmıştır.

3. Deneysel Süreç ve Sonuçlar

Bu bölümde, çalışma kapsamında uygulanan deneysel süreç, regresyon algoritmaları ile elde edilen sonuçların değerlendirilmesinde kullanılan başarımlar ölçütleri ve tuzlu suda metin hidrat oluşum sıcaklığının basınca ve iyon konsantrasyonlarına dayalı özneliklere bağlı olarak belirlenmesinde kullanılan temel regresyon algoritmalarının etkinlikleri karşılaştırmalı olarak değerlendirilmektedir.

3.1. Deneysel Süreç ve Ölçütler

Çalışma kapsamında kullanılan regresyon algoritmalarının gerçekleştirimi MATLAB Regression Learner kullanılarak yapılmıştır. Deneysel sonuçlarda, 10-kat çapraz geçirme kullanılmıştır. Bu yöntem ile veri seti, 10 eşit parçaya ayrılarak, her bir adımda parçalardan bir tanesi modelin sınanmasında, geriye kalan parçalar ise eğitiminde kullanılmıştır.

Regresyon algoritmalarının başarımlarının değerlendirilmesinde, ortalama kare hata (mean square error, MSE), kök ortalama kare hata (root mean square error, RMSE), R-kare, ortalama mutlak hata (mean absolute error, MAE) ölçütleri kullanılmıştır. Buna ek olarak, öğrenme algoritmalarının eğitim süreleri de değerlendirmeye alınmıştır.

Ortalama kare hatası (MSE), bir regresyon modelinin bir dizi noktaya ne kadar yakın olduğunu ölçümleyen bir değerlendirme ölçütüdür. MSE değerinin sıfıra yakın olması, regresyon algoritmasının iyi bir öğrenme modeli oluşturduğunu gösterir. MSE, Eşitlik 5'e göre hesaplanmaktadır (Hodson, 2022):

$$MSE = \left(\frac{1}{n}\right) \sum_{i=1}^n (y_i - y_i^*)^2 \quad (5)$$

Burada, n , örnek sayısını, y_i gerçek değeri, y_i^* ise tahmin edilen değeri temsil etmektedir.

Kök ortalama kare hata (RMSE), regresyon modellerinin değerlendirilmesinde kullanılan bir ölçüttür. RMSE'de tahmin edilen değer ile gerçek değer arasındaki fark standart sapmaya dayalı olarak Eşitlik 6'ya göre hesaplanmaktadır (Hodson, 2022):

$$RMSE = \sqrt{\left(\frac{1}{n}\right) \sum_{i=1}^n (y_i - y_i^*)^2} \quad (6)$$

Burada, n , örnek sayısını, y_i gerçek değeri, y_i^* ise tahmin edilen değeri temsil etmektedir. Standartlaştırılmış gözlemler ve tahminler RMSE girdileri olarak kullanıldığında, korelasyon katsayısı ile doğrudan bir ilişki vardır. Korelasyon katsayısı 1 olduğunda, RMSE 0 olmaktadır, yani tüm noktalar regresyon doğrusu üzerindedir ve hata bulunmamaktadır.

Ortalama mutlak hata (MAE), regresyon modellerinin değerlendirilmesinde sıklıkla kullanılan bir ölçüttür. MAE, iki sürekli değişken arasındaki farkı, bu iki değer arasındaki farkların mutlak değerleri

toplamını alarak ölçümler. MAE değerinin düşük olması, tahmin edilen değer ile gerçek değer arasındaki farkın az olduğunu gösterir. MAE, Eşitlik 7'ye göre hesaplanmaktadır (Hodson, 2022):

$$MAE = \left(\frac{1}{n}\right) \sum_{i=1}^n |y_i - y_i^*| \quad (7)$$

Burada, n , örnek sayısını, y_i gerçek değeri, y_i^* ise tahmin edilen değeri temsil etmektedir. Hem MAE hem de RMSE 0 ile ∞ arasında değişebilir ve düşük değerler öğrenme modelinin daha yüksek başarımlı olduğunu gösterir.

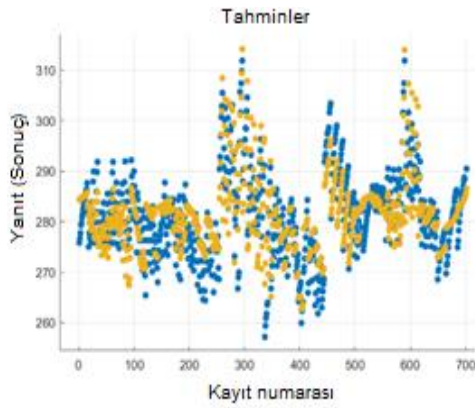
R-kare, regresyon modellerinin değerlendirilmesinde kullanılan diğer bir ölçüttür ve Eşitlik 8'e göre hesaplanmaktadır:

$$R^2 = 1 - \frac{\sum_{i=1}^n (y_i - y_i^*)^2}{\sum_{i=1}^n (y_i - \mu)^2} \quad (8)$$

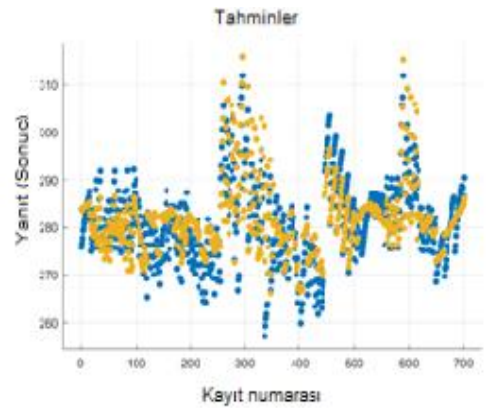
Burada, n , örnek sayısını, y_i gerçek değeri, y_i^* tahmin edilen değeri, μ ise gözlemlenen verilerin ortalamasını temsil etmektedir. R-kare değeri 1'e ne kadar yakınsa, uyum o kadar iyidir. 0'lık bir R-kare değeri, regresyon çizgisinin verilere hiç uymadığını gösterirken, 1'lik bir R-kare değeri, mükemmel bir uyumu gösterir.

3.2. Deneysel Sonuçlar

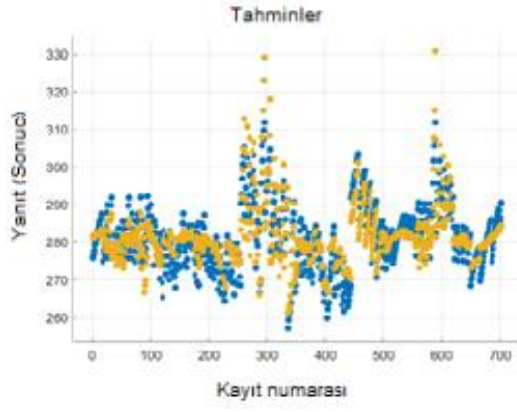
Şekil 1-18'de regresyon algoritmaları ile elde edilen yanıt grafikleri sunulmaktadır. Burada, mavi noktalar, veri setinde yer alan örnekleri, turuncu noktalar ise, öğrenme algoritmasınca elde edilen veri örneklerini temsil etmektedir.



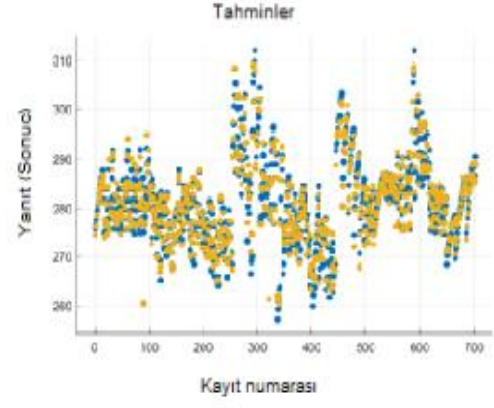
Şekil 1. Doğrusal regresyon yanıt grafiği



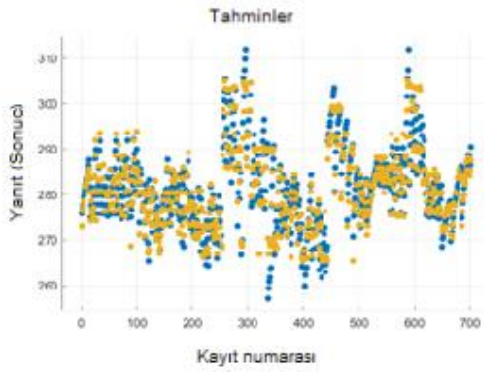
Şekil 2. Sağlam doğrusal regresyon yanıt grafiği



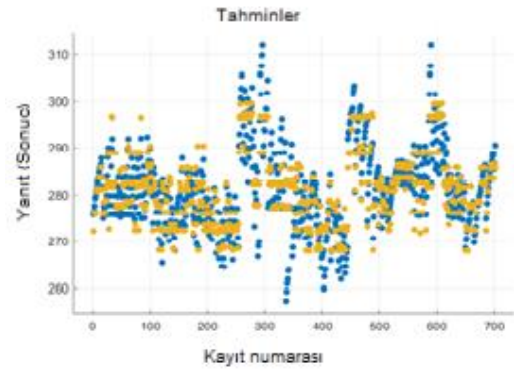
Şekil 3. Kademeli doğrusal regresyon yanıt grafiği



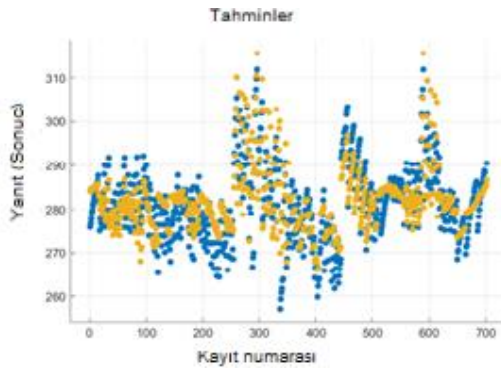
Şekil 4. İnce ağaç yanıt grafiği



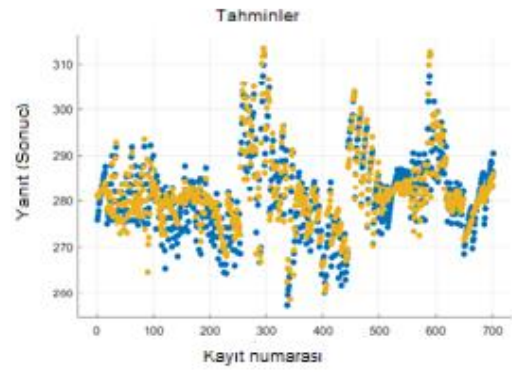
Şekil 5. Orta ağaç yanıt grafiği



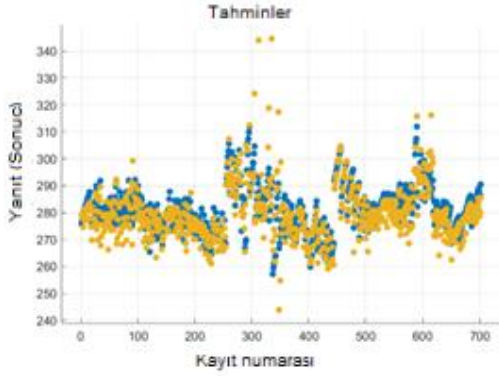
Şekil 6. Kaba ağaç yanıt grafiği



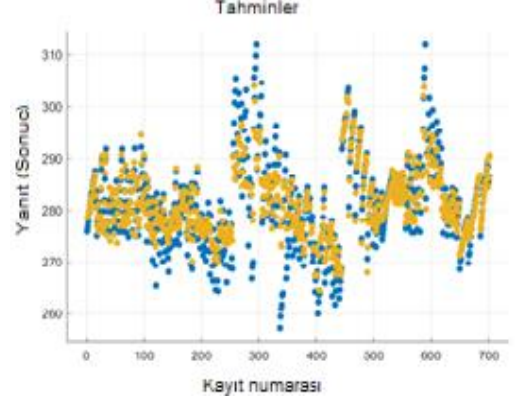
Şekil 7. SVM (Doğrusal) yanıt grafiği



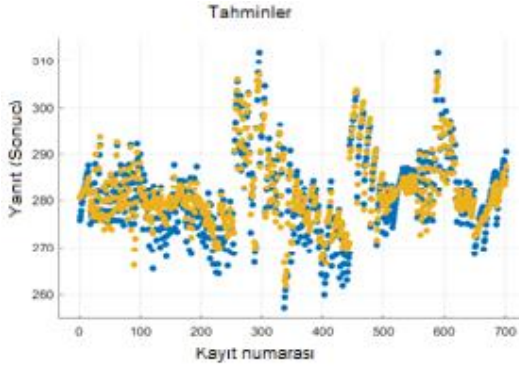
Şekil 8. SVM (İkinci dereceden) yanıt grafiği



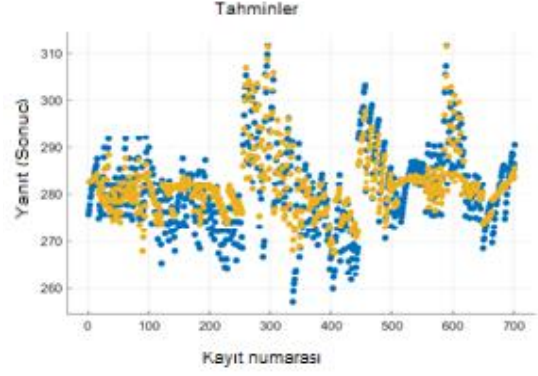
Şekil 9. SVM (Üçüncü dereceden) yanıt grafiği



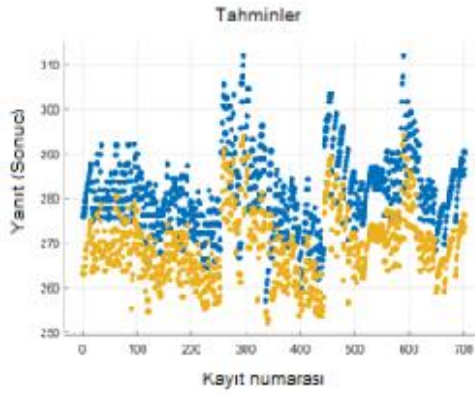
Şekil 10. SVM (ince Gauss) yanıt grafiği



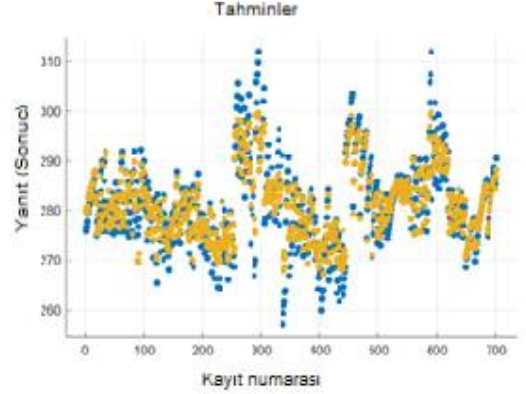
Şekil 11. SVM (orta Gauss) yanıt grafiği



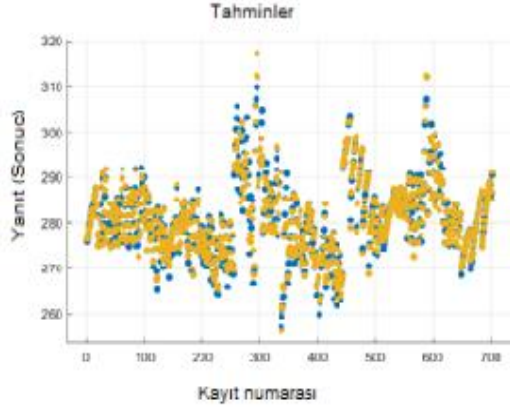
Şekil 12. SVM (kaba Gauss) yanıt grafiği



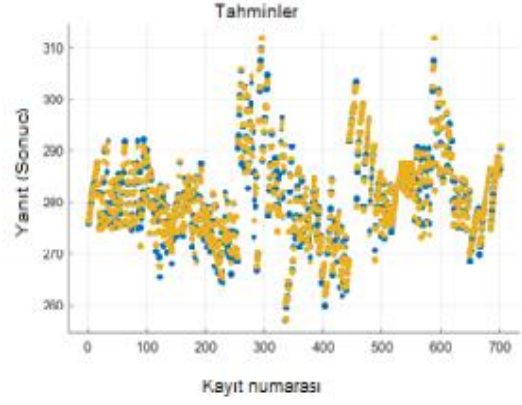
Şekil 13. Önyüklemeli karar ağaçları yanıt grafiği



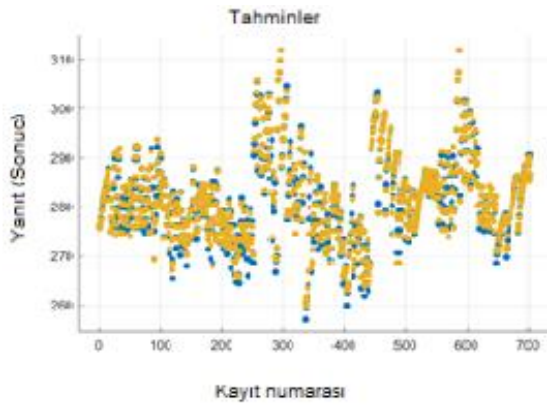
Şekil 14. Güçlendirilmiş karar ağaçları yanıt grafiği



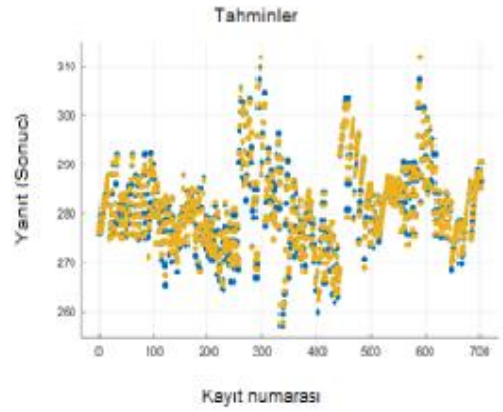
Şekil 15. Kare üstel GPR yanıt grafiği



Şekil 16. Matern 5/2 GPR yanıt grafiği



Şekil 17. Üstel GPR yanıt grafiği



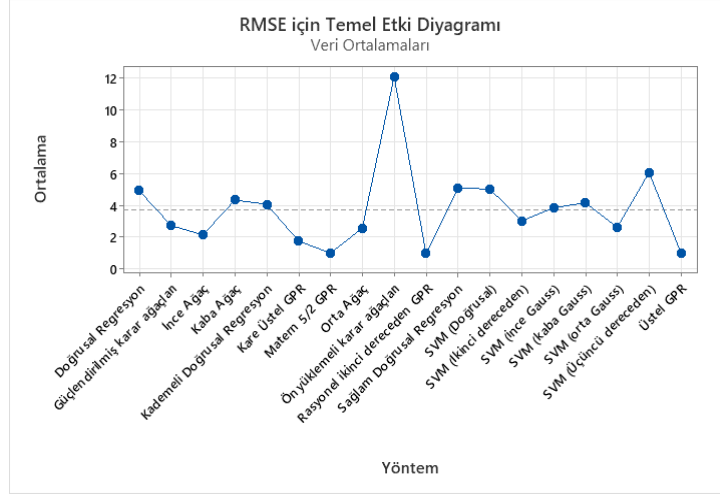
Şekil 18. Rasyonel ikinci dereceden GPR yanıt grafiği

Tablo 2. Regresyon algoritmaları ile elde edilen deneysel sonuçlar

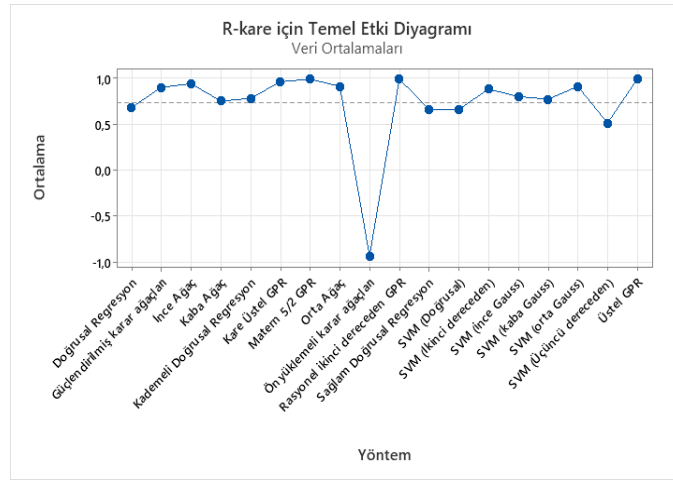
| Yöntem | RMSE | R-kare | MSE | MAE | Eğitim Süresi (sn) |
|-----------------------------|--------|--------|---------|--------|--------------------|
| Doğrusal Regresyon | 4,9028 | 0,6800 | 24,0380 | 3,9489 | 0,3289 |
| Sağlam Doğrusal Regresyon | 5,0441 | 0,6600 | 25,4430 | 3,9050 | 0,3823 |
| Kademeli Doğrusal Regresyon | 4,0539 | 0,7800 | 16,4340 | 3,2810 | 11,6230 |
| İnce Ağaç | 2,1297 | 0,9400 | 4,5356 | 1,3477 | 0,2202 |
| Orta Ağaç | 2,5461 | 0,9100 | 6,4826 | 1,8254 | 0,1740 |
| Kaba Ağaç | 4,3176 | 0,7500 | 18,6420 | 2,9332 | 0,1595 |
| SVM (Doğrusal) | 5,0223 | 0,6600 | 25,2240 | 3,9219 | 1,0306 |
| SVM (İkinci dereceden) | 3,0047 | 0,8800 | 9,0283 | 2,4032 | 48,0880 |
| SVM (Üçüncü dereceden) | 6,0539 | 0,5100 | 36,6500 | 3,9893 | 85,4100 |
| SVM (ince Gauss) | 3,8297 | 0,8000 | 14,6660 | 2,1297 | 0,2673 |
| SVM (orta Gauss) | 2,5953 | 0,9100 | 6,7357 | 1,9324 | 0,2566 |
| SVM (kaba Gauss) | 4,1478 | 0,7700 | 17,2040 | 3,2730 | 0,2448 |

| | | | | | |
|-------------------------------|---------------|---------------|---------------|---------------|---------|
| Önyüklemeli karar ağaçları | 12,0780 | -0,9400 | 145,8700 | 11,9390 | 1,5263 |
| Güçlendirilmiş karar ağaçları | 2,7168 | 0,9000 | 7,3810 | 1,8089 | 1,6012 |
| Kare Üstel GPR | 1,7390 | 0,9600 | 3,0241 | 0,9542 | 5,1411 |
| Matern 5/2 GPR | 0,9850 | 0,9900 | 0,9703 | 0,6290 | 5,9258 |
| Üstel GPR | 0,9964 | 0,9900 | 0,9929 | 0,6065 | 6,4347 |
| Rasyonel ikinci dereceden GPR | 0,9517 | 0,9900 | 0,9058 | 0,6066 | 12,4100 |

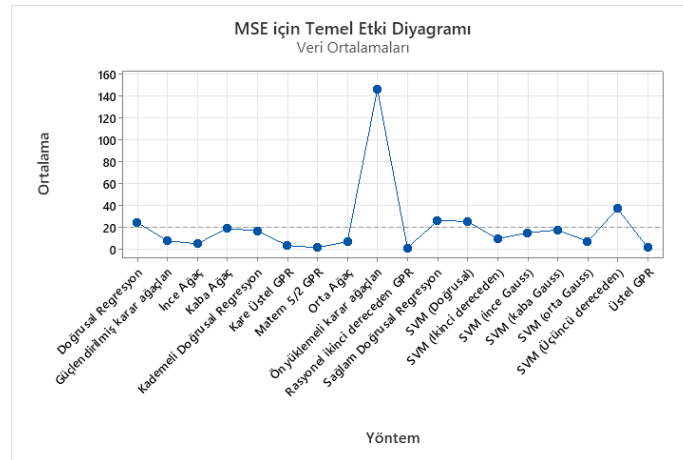
Tablo 2’de deneysel analizlerde kullanılan regresyon algoritmaları ile değerlendirme ölçütlerinde elde edilen sonuçlar sunulmaktadır. Karşılaştırılan yöntemler arasında, en iyi R-kare, RMSE ve MSE değerleri, rasyonel ikinci dereceden GPR yöntemi ile elde edilmektedir. Çalışma kapsamında ele alınan doğrusal regresyon tabanlı modeller arasında en iyi sonucun kademeli doğrusal regresyon algoritması ile alındığı görülmektedir. Sağlam doğrusal regresyon algoritması ise, doğrusal regresyon algoritmasına kıyasla daha düşük sonuçlar vermektedir. Çalışma kapsamında ele alınan ağaç tabanlı sınıflandırma algoritmaları arasında en iyi sonuç ince ağaç modeli ile alınmaktadır. İnce ağaç modelini orta ağaç modeli takip etmektedir. Deneysel analizlerde dikkate alınan destek vektör makineleri tabanlı modeller arasında en yüksek başarımlı SVM (orta Gauss) modeli ile alınmaktadır. Bu modeli, ikinci dereceden SVM modeli takip etmektedir. Çalışma kapsamında dikkate alınan topluluk yöntemleri incelendiğinde, önyüklemeli karar ağaçları modelinin oldukça performans gösterdiği, buna karşın, güçlendirilmiş karar ağaçları modeli ile yüksek performans elde edildiği görülmektedir. Çalışmada ele alınan tüm yöntemler arasında, Gauss süreç regresyonu tabanlı modellerin diğer yaklaşımlara kıyasla daha yüksek başarımlı sonuçları elde ettiği gözlenmektedir. Eğitim süreleri bakımından incelendiğinde ise, doğrusal regresyon, sağlam doğrusal regresyon, ince ağaç, orta ağaç, kaba ağaç ile bazı SVM tabanlı modellerin eğitim sürelerinin diğer yöntemlere kıyasla düşük olduğu görülmektedir. Tablo 2’de sunulan regresyon algoritmalarına ilişkin sonuçlar, tuzlu suda metin hidrat oluşum sıcaklığının basınca ve iyon konsantrasyonlarına dayalı özneliklere bağlı olarak tahmin edilmesinde makine öğrenmesi algoritmalarının başarıyla uygulanabileceğini göstermektedir. Tablo 2’de sunulan R-kare değerlerine bakıldığında, GPR tabanlı modellerin yüksek başarımlı regresyon modelleri elde ettiği görülmektedir.



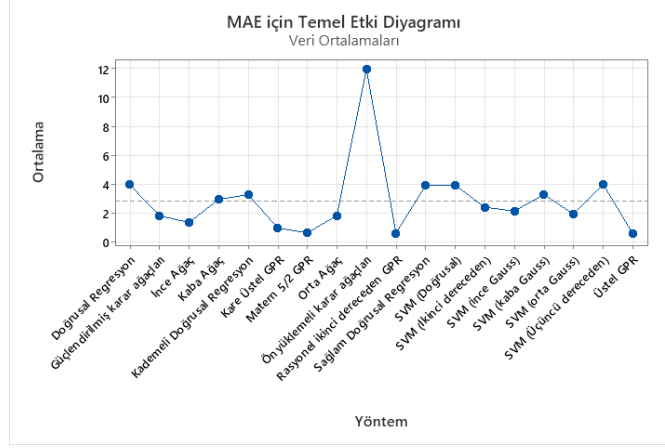
Şekil 19. RMSE için temel etki diyagramı



Şekil 20. R-kare için temel etki diyagramı



Şekil 21. MSE için temel etki diyagramı



Şekil 22. MAE için temel etki diyagramı

Çalışma kapsamında ele alınan değerlendirme ölçütlerinin farklı makine öğrenmesi algoritmalarına bağlı değişimini özetlemek amacıyla Şekil 19-22’de sırasıyla RMSE, R-kare, MSE ve MAE ölçütleri için temel etki diyagramları sunulmaktadır. Şekil 19’da sunulan RMSE değerleri incelendiğinde, en iyi (en düşük) RMSE değerinin rasyonel ikinci dereceden GPR yöntemi ile (RMSE: 0,9517) elde edildiği görülmektedir. Bu yöntemi, Matern 5/2 GPR yöntemi (RMSE: 0,9850) izlemektedir. En kötü (en yüksek) RMSE değeri ise önyüklemeli karar ağacı (RMSE: 12,0780) ile elde edilmektedir. Bu nedenle, RMSE değerleri bakımından en iyi ve en kötü yöntemler arasında anlamlı bir farklılık gözlenmektedir. Şekil 20’de sunulan R-kare değerleri incelendiğinde, önyüklemeli karar ağaçları yöntemi ile elde edilen R-kare değerinin, diğer yöntemler ile elde edilen R-kare değerleri ile önemli ölçüde farklılaştığı ve en düşük değerin (R-kare: -0,94) bu yöntem ile alındığı görülmektedir. Şekil 20’de sunulan R-kare değerlerine göre, GPR algoritmasına dayalı yöntemler, R-kare değerleri bakımından en iyi (en yüksek) değerleri vermektedir. Matern 5/2 GPR, üstel GPR ve rasyonel ikinci dereceden GPR yöntemi ile (R-kare: 0,9900) değeri alınmaktadır. Şekil 21’de özetlenen MSE değerlerine bakıldığında, Şekil 19 ve Şekil 20’de sunulan ölçüt değerlerinde olduğu gibi, en kötü ölçüt değerlerinin önyüklemeli karar ağacı algoritması ile elde edildiği görülmektedir. En iyi sonuçlar ise genellikle GPR tabanlı yöntemler ile elde edilmektedir. Şekil 22’de sunulan MAE değerleri incelendiğinde, diğer ölçütlerde elde edilen sonuçlar ile benzer şekilde, önyüklemeli karar ağaçları yöntemi ile elde edilen MAE değerinin, diğer yöntemlerden önemli ölçüde farklılaştığı ve (MAE: 11,939) değeri ile en kötü (en yüksek) değerin alındığı gözlenmektedir. Çalışma kapsamında, ele alınan problemin modellenmesinde kullanılan makine öğrenmesi regresyon algoritmalarından, GPR tabanlı olanların ele alınan problem için yüksek başarılı modeller olduğu, önyüklemeli karar ağaçları yönteminin ise uygun olmadığı gözlenmektedir.

4. Sonuçlar

Petrol ve gaz boru hatlarında akış sürekliliğini etkileyen en kritik konulardan biri hidrat oluşumudur. Hidrat oluşumu hem güvenlik hem de ekonomi için tehlikeli olabilecek boruların tıkanmasına neden olabilir. Sonuç olarak, hidrat oluşumu ve bozunma koşullarının belirlenmesi ve analiz edilmesi kritik

bir bilimsel zorluktur. Bu çalışma kapsamında, metan hidrat oluşum koşullarının incelenmesi ve analizi problemi bir makine öğrenmesi problemi olarak modellenmiştir. Bu doğrultuda, doğrusal regresyon, karar ağacı, destek vektör makineleri, Gauss süreç regresyonu algoritmalarına dayalı on sekiz temel makine öğrenmesi algoritmasının etkinliği değerlendirilmiştir. Deneysel analizlerde kullanılan makine öğrenmesi algoritmaları ile oluşturulan modellerde ortalama mutlak hata için (RMSE= 0,9517), R-kare ölçütü için (R-kare=0,99), ortalama kare hatası ölçütü için (MSE=0,9058) ve ortalama mutlak hata ölçütü için (MAE=0,6065) değerleri elde edilmektedir. 1951-2000 yılları arasında yayınlanan bilimsel çalışmalardan elde edilen verilere göre yapılan analizler, makine öğrenmesi algoritmalarının oluşum koşullarının tahmin edilmesi ve analizinde geleneksel kimyasal/termodinamik modellere kıyasla daha yüksek tahminleme başarımı elde edebildiğini göstermektedir. Deneysel analizlerde kullanılan tüm algoritmalar arasında en yüksek sonuçlar genellikle Gauss süreç regresyonu tabanlı algoritmalar ile alınmaktadır.

Çıkar Çatışması Beyanı

Makale yazarları herhangi bir çıkar çatışması olmadığını beyan eder.

Araştırmacıların Katkı Oranı Beyan Özeti

Yazarlar makaleye eşit oranda katkı sağladıklarını beyan ederler.

Kaynakça

- Alireza B. Investigation of predictive methods of gas hydrate formation in natural gas transmission pipelines. *Advanced Journal of Chemistry, Section B* 2020; 2(3): 91-101.
- Anzali S., Berthold MR., Fioravanzo E., Neagu D., Péry ARR., Worth AP., Yang C., Cronin MTD., Richarz AN. Development of computational models for the risk assessment of cosmetic ingredients. *IFSCC Magazine* 2012; 15(4): 249-255.
- Beck VL. *Linear regression: Models, Analysis & Applications*. Hauppauge, NY: Nova Science: 2017.
- Bhattacharjee G., Goh MN., Arumuganainar SEK., Zhang Y., Linga P. Ultra-rapid uptake and the highly stable storage of methane as combustible ice. *Energy&Environmental Science* 2020; 13(12): 4946–4961.
- Boullart L., Krijgsman R., Vingerhoeds RA. *Application of artificial intelligence in process control* Pergamon Press, Oxford, 1992.
- Chen GJ., Guo TM. A new approach to gas hydrate modelling. *Chemical Engineering Journal* 1998; 71(2): 145-151.
- Dholabhai PD., Kalogerakis N., Bishnoi PR. Kinetics of methane hydrate formation in aqueous electrolyte solutions. *Chemical Engineering Journal*; 1993; 71(1): 68–74.
- EIA. *Annual Energy Outlook 2020 with projections to 2050*. U.S. Energy Information Administration. 2020; 162. <https://www.eia.gov/aeo> (Erişim tarihi: 3 Mart 2022).

- Elyashberg ME., Blinov KA., Molodtsov SG., Williams A J. Elucidating “undecipherable” chemical structures using computer assisted structure elucidation approaches. *Magnetic Resonance in Chemistry* 2012; 50: 22-27.
- Gasteiger J. Chemistry in times of artificial intelligence. *ChemPhysChem*, 2020; 21(20): 2233-2242.
- Gilat A. *MATLAB: An Introduction with applications*, 3rd ed. Chichester, England: John Wiley & Sons, 2008.
- Gudmundsen J., Borrehaug A. Frozen hydrate for transport of natural gas. *Second International Symposium on Gas Hydrates*; Toulouse, 1996; 415–422.
- Hammerschmidt EG. Formation of gas hydrates in natural gas transmission lines. *Industrial & Engineering Chemistry*, 1934; 26(8): 851–855.
- Hodson TO. Root mean square error (RMSE) or mean absolute error (MAE): when to use them or not. *Geosci. Model Dev. Discuss*, 2022.
- Inkong K., Yodpetch V., Kulprathipanja S., Rangsunvigit P., Linga P. Influences of different co-promoters on the mixed methane hydrate formation with salt water at moderate conditions. *Fuel*, 2022; 316(6): 123215.
- Jiafang X., Shuai D., Yongchao H., Xuefeng Y., Jun Z. Molecular simulation study of methane hydrate formation mechanism in NaCl solutions with different concentrations. *Chemical Physics*, 2021; 551: 111323.
- John V., Papadoupoulos K., Holder G. A generalized model for predicting equilibrium conditions for gas hydrates. *AIChE Journal* 1985; 31(2): 252-259.
- Kantardzic M., *Data mining: Concepts, models, methods, and algorithms*. 2nd ed. Hoboken, NJ: Wiley-Blackwell, 2011.
- Le T., Epa VC., Burden FR., Winkler DA. Quantitative structure–property relationship modeling of diverse materials properties. *Chemical Reviews* 2012; 112: 2889-2919.
- Lu H., Matsumoto R., Tsuji Y., Oda H. Anion plays a more important role than cation in affecting gas hydrate stability in electrolyte solution- A recognition from experimental results. *Fluid Phase Equilibria*, 2001; 178(1-2): 225–232.
- Lv Q., Zang X., Li X., Li G. Effect of seawater ions on cyclopentane-methane hydrate phase equilibrium. *Fluid Phase Equilibria* 2018; 458: 272–277.
- Mak KK., Pichika MR. Artificial intelligence in drug development: present status and future prospects. *Drug Discovery Today*, 2019; 24: 773-780.
- Montgomery DC., Peck EA. *Introduction to linear regression analysis*. 3rd ed. Nashville, TN: John Wiley & Sons, 2001.
- Ng HJ., Robinson DB. The prediction of hydrate formation in condensed systems. *AIChE Journal* 1977; 23(4): 477-482.
- Onan A. Şirket iflaslarının tahminlenmesinde karar ağacı algoritmalarının karşılaştırmalı başarımlarını analizi. *Bilişim Teknolojileri Dergisi*. 2015; 8(1).

- Onan A., Korukoğlu S., Bulut H. Ensemble of keyword extraction methods and classifiers in text Classification. *Expert Systems with Applications*, 2016; 57: 232–247.
- Pandey G., Veluswamy HP., Sangwai J., Linga P. Morphology study of mixed methane-tetrahydrofuran hydrates with and without the presence of salt. *Energy Fuels* 2019; 33(6): 4865–4876.
- Rasmussen A., Williams CKI. *Gaussian processes for machine learning*. London, England: MIT Press, 2019.
- Rousseeuw PJ., Leroy AM. *Robust regression and outlier detection*. 1st ed. Nashville, TN: John Wiley & Sons, 2005.
- Sabil KM., Roman VR., Witkamp GJ., Peters CJ. Experimental observations on the competing effect of tetrahydrofuran and an electrolyte and the strength of hydrate inhibition among metal halides in mixed CO₂ hydrate equilibria. *The Journal of Chemical Thermodynamics*, 2010; 42(3): 400–408.
- Sapag K., Vallone A., Blanco AG., Solar C. Adsorption of methane in porous materials as the basis for the storage of natural gas. In: Potocnik P, editor *Natural Gas* New York: IntechOpen, 2010; 205–44.
- Schleifer KJ. In *modern methods in crop protection research* (Eds. P. Jeschke, W. Krämer, U. Schirmer, W. Witschel), Wiley-VCH, Weinheim, 2012; 21–41.
- Sloan D., Koh E. *Clathrate hydrates of natural gases*. 3rd ed.; CRC Press: US, 2007; 20074156.
- Sun S., Zhao J., Yu D. Dissociation enthalpy of methane hydrate in salt solution. *Fluid Phase Equilibria* 2018; 456: 92–97.
- Technology partner for innovative companies. *Machine Learning and AI in Food Industry Solutions and potential*, <https://spd.group/machine-learning/machine-learning-and-ai-in-foodindustry/> (Son Erişim: 10 Haziran 2020).
- Van der Waals J. Clathrate solutions. *Advances in Chemical Physics*., 1959; 2: 1–57.
- Veluswamy HP., Kumar A., Kumar R., Linga P. Investigation of the kinetics of mixed methane hydrate formation kinetics in saline and seawater. *Applied Energy* 2019; 253: 113515.
- Walsh MR., Hancock SH., Wilson SJ., Patil SL., Moridis GJ., Boswell R., Collett TS., Koh CA., Sloan E.D. Preliminary report on the commercial viability of gas production from natural gas hydrates. *Energy Economics* 2009; 31(5): 815–823.
- Wang F., Liu GQ., Meng HL., Guo G., Luo SJ., Guo RB. Improved methane hydrate formation and dissociation with nanosphere-based fixed surfactants as promoters. *ACS Sustainable Chemistry & Engineering* 2016; 4(4): 2107–2113.
- Wang X., French J., Kandadai S., Chua HT. Adsorption measurements of methane on activated carbon in the temperature range (281 to 343) K and pressures to 1.2 MPa. *Journal of Chemical & Engineering Data* 2010; 55(8): 2700–2706.
- Wang ZY., Zhao Y., Sun B., Chen L., Zhang J., Wang X. Modeling of hydrate blockage in gas-dominated systems. *Energy&Fuels* 2016; 30(6): 4653–4666.

- Xu H., Jiao Z., Zhang Z., Huffman M., Wang Q. Prediction of methane hydrate formation conditions in salt water using machine learning algorithms. *Computers & Chemical Engineering* 2021; 151, 107358.
- Yevi GY., Rogers RE. Storage of fuel in hydrates for natural gas vehicles (NGVs). *Journal of Energy Resources Technology* 1996; 118: 209–213.
- Zupan J., Novic M., Li X., Gasteiger J. Classification of multicomponent analytical data of olive oils using different neural networks. *Analytica Chimica Acta* 1994; 292: 219-234.
- Zuo L., Zhao S., Ma Y., Jiang F., Zu Y. Natural gas hydrate prediction and prevention methods of city gate stations. *Mathematical Problems in Engineering* 2021; Article ID 5977460, 10 pages.