http://pmse.scu.edu.cn

乳液成型制备二氧化硅/聚四氟乙烯复合薄膜及其性能优化

高 炜，周 茜，沈佳斌，陈 蓉，郭少云

（高分子材料工程国家重点实验室（四川大学）四川大学高分子研究所 四川省橡塑材料复合成型技术工程实验室，四川 成都 610065）

摘要：聚四氟乙烯（PTFE）由于优异的介电性能已成为高频通讯的重要载体，通常将其与无机填料复配以提高其力学性能。但是，受限于PTFE极低的表面能，无机填料与其界面作用极差，难以在传统车削或压延成膜的强应力作用下实现高填充复合薄膜材料的成型。因此文中尝试以尺寸更小，界面可灵活构筑的PTFE乳液为基体、二氧化硅（SiO_2）为无机填料，通过SiO_2表面改性对SiO_2/PTFE复合膜材料性能强化，研究无机粒子表面改性对复合材料分散、界面及力学性能等的影响。研究发现，当偶联剂质量分数为5%时，SiO_2/PTFE复合薄膜（80 μm）力学性能最优，拉伸强度由SiO_2改性前的4.35 MPa增加至5.33 MPa、断裂伸长率由38.2%增加至134.0%。为提高PTFE/SiO_2界面强度、制备高性能PTFE复合薄膜材料提供了新方法。

关键词：聚四氟乙烯；二氧化硅；硅烷偶联剂；力学性能

中图分类号：TB383 **文献标识码：**A **文章编号：**1000-7555（2024）08-0107-08

聚四氟乙烯（PTFE）是一种综合性能优良的特种工程塑料，其制备的薄膜材料已广泛用于建筑、化工以及电子等领域[1,2]。由于PTFE分子间作用力小，随温度变化呈现出复杂的相转变，导致材料线性热膨胀系数高且抗蠕变性差，因此通常需将PTFE与功能性填料复配以提高综合性能[3]。在众多填料中，陶瓷颗粒SiO_2具有硬度大、线性热膨胀系数低和价格低廉等优点，目前已被广泛用于改善PTFE的耐磨性、力学性能及热膨胀性能等，Martins等[4]研究结果表明SiO_2填充可以提高PTFE弹性模量和刚度。目前，关于PTFE复合膜的研究多是基于PTFE的车削成型或者压延成型制备[5,6]，但这些成型方式的强应力场作用会将聚四氟乙烯粒子变形压实，使树脂粒子堆砌程度和密度分布不均，同时使填料与PTFE间发生界面滑脱，产生孔洞缺陷。如何通过成膜工艺的设计实现PTFE复合膜材料的性能提升是研究者迫切需要解决的难题。

PTFE乳液是平均粒径小于0.5 μm（一般为0.2~0.3 μm，亚微米级）、带负电的PTFE胶粒悬浮在水性体系中形成的分散液，可以通过湿法混合工艺制备复合材料，有望实现填料与PTFE的充分浸润。但是采用PTFE乳液与功能性填料复配成膜的研究还未见报道。由于无机填料SiO_2表面富含—OH等极性官能团，与非极性PTFE性质差别较大，因此二者界面间相互作用较弱，增加了复合材料的界面缺陷[7]。目前已有大量研究通过偶联剂来改善SiO_2的亲疏水性实现SiO_2与聚合物的界面黏合[8,9]，但一般为PTFE悬浮树脂和粒子干法混合制得[10]。采用PTFE乳液进行SiO_2/PTFE复合薄膜的制备还未见报道，其涉及到的SiO_2在PTFE乳液中的分散以及与PTFE界面作用问题与传统PTFE树脂颗粒/SiO_2体系截然不同。故需选择合适的偶联剂，研究偶联剂表面改性对SiO_2在乳液复合体系中分散行为的影响，并有效提高SiO_2与PTFE界面相容性，实现制备性能良好的SiO_2/PTFE复合薄膜的目的。

因此，针对传统PTFE膜成型过程中填料-基体

doi: 10.16865/j.cnki.1000-7555.2024.0146
收稿日期：2024-03-20
基金项目：四川省自然科学基金面上项目（2022NSFSC0357）；四川省杰出青年科技人才项目（2022JDJQ0023）
通讯联系人：陈蓉，主要从事含氟高分子材料高性能化及功能化研究，E-mail：rongchen@scu.edu.cn

混合效果差和强应力场作用等问题，本文采用PTFE乳液为研究基体，选用亲水性硅烷偶联剂对SiO_2进行改性，探讨了PTFE乳液体系中改性SiO_2的分散行为，系统研究了偶联剂含量对SiO_2表面接枝率和其与PTFE界面间相互作用以及SiO_2/PTFE复合薄膜力学性能的影响及作用机理。成功制备了具有均匀致密结构、抗蠕变性和力学性能优异的PTFE填充膜材料，为PTFE高性能化和多功能化膜材料的加工制造提供新思路和新方法。

1 实验部分

1.1 主要原料

聚四氟乙烯：分散乳液，固含量为60%，粒径为0.05~0.2 μm，中昊晨光；SiO_2：D_{50}为12 μm，成都鼎胜时代科技有限公司；硅烷偶联剂（A63）：分析纯，四川盈乐威科技有限公司；无水乙醇（C_2H_6O）、去离子水（DI water）：成都市科隆化学品有限公司。

1.2 实验样品制备

1.2.1 不同含量亲水硅烷偶联剂A63改性SiO_2的制备：称取适量SiO_2细粉于60 ℃鼓风烘箱干燥1 h，并配置蒸馏水和乙醇体积比为12:1的混合液，然后分别逐滴加入质量分数1%，3%，5%，7%和10%偶联剂于用于改性SiO_2的蒸馏水和乙醇中，按照偶联剂、H_2O和乙醇的质量比1:24:2混合，搅拌1 h后加入SiO_2继续搅拌，并在80 ℃进行脱水缩合反应，反应0.5 h后取出。

1.2.2 SiO_2/PTFE薄膜的成型制备：称取一定质量的PTFE乳液分别与纯SiO_2和改性SiO_2溶液混合，其中SiO_2与PTFE的质量比为3:7，搅拌1 h后成型，在70 ℃鼓风烘箱干燥5 min，随后在马弗炉中烧结8 min，烧结温度为375 ℃。通过成型工艺控制复合薄膜的厚度为80 μm左右。

1.3 测试与表征

1.3.1 X射线光电子能谱分析：通过XSAM-800型光电子能谱仪（英国Kratos公司）分析SiO_2改性前后的表面元素。

1.3.2 固体核磁共振(^{29}Si CP/MAS NMR)分析：采用Varian UnityPlus-400型核磁共振谱仪进行NMR分析，并利用5 mm氮化硅或氧化锆（ZrO_2）转子于室温（293 K）下进行。

1.3.3 SiO_2的活化率测定：取定量改性SiO_2加入定量蒸馏水中，超声搅拌，静置10min，通过上层清液下降高度变化按照式(1)计算改性SiO_2的活化率（H），

$$H=\frac{l_0-l_s}{l_0} \tag{1}$$

式中：l_0——混合溶液总高度，cm；l_s——上层清液的高度，cm。

1.3.4 Zeta电位测试：于室温下采用英国Malven公司的Zetasizer Nano ZS90测定Zeta电位，探索改性前后SiO_2表面动电位的变化。

1.3.5 扫描电子显微镜分析：通过Nova NanoSEM 450型扫描电子显微镜（SEM，美国FEI公司）观察改性前后SiO_2表面形貌以及拉伸断裂后的薄膜断面。

1.3.6 力学性能测试：采用Q800型DMA（美国TA公司）进行动态力学性能测试，选用薄膜拉伸模式，测试时升温速率设为3 ℃/min，频率设为1 Hz，温度范围设为0~250 ℃，对材料储能模量进行测试；采用Instron 5966型万能材料试验机（美国Instron公司）按国标GB/T 1040.2-2006测试样品的拉伸性能，拉伸速率为10 mm/min。

2 结果与讨论

2.1 偶联剂含量对SiO_2表面结构的影响

为了研究硅烷偶联剂对SiO_2的表面改性效果，选用XPS对纯SiO_2和偶联剂质量分数分别为3%，5%和7%的改性SiO_2进行表面元素分析，如Fig.1所示。改性SiO_2的XPS在398.6 eV处出现了N1s峰(Fig.1(a))，说明改性SiO_2表面出现了N元素，SiO_2表面顺利接枝了硅烷偶联剂。对N1s谱图进行分析(Fig.1(b))，发现偶联剂质量分数为5%时，N1s峰比3%和7%时更强，说明偶联剂质量分数由0增加到5%时，更多的硅烷偶联剂水解产物参与SiO_2表面化学键合反应，使SiO_2表面接枝了更多的官能团。当偶联剂质量分数继续增加至7%时，硅烷偶联剂水解产生的硅醇结构自身之间发生缩聚反应，产生偶联剂间的Si—O—Si结构，使SiO_2表面接枝上的偶联剂数量变少。

纯SiO_2和改性SiO_2的Si2p的XPS谱图见Fig.1(c)。由图可知，未改性SiO_2的Si2p结合能为103.8 eV，添加偶联剂改性后Si2p结合能为102.8 eV左

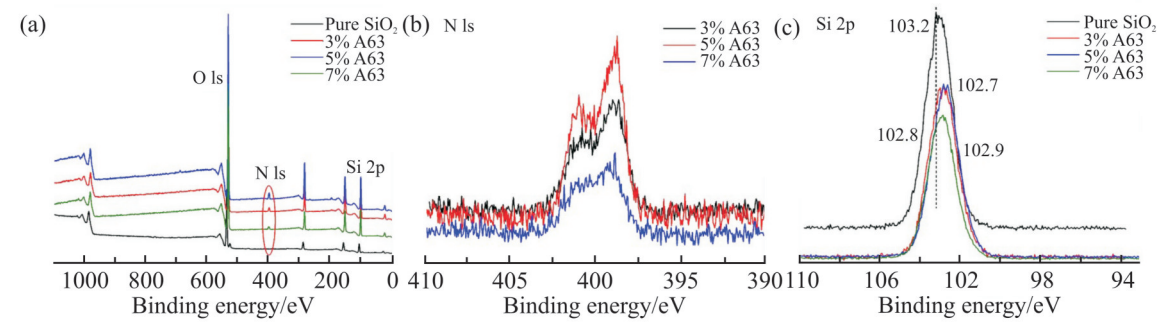


Fig. 1 (a) XPS spectra of pure SiO_2 and modified SiO_2 with different contents of A63; (b) XPS spectra of N1s of modified SiO_2 with different contents of A63; (c) XPS spectra of Si2p of SiO_2 and modified SiO_2 with different contents of A63

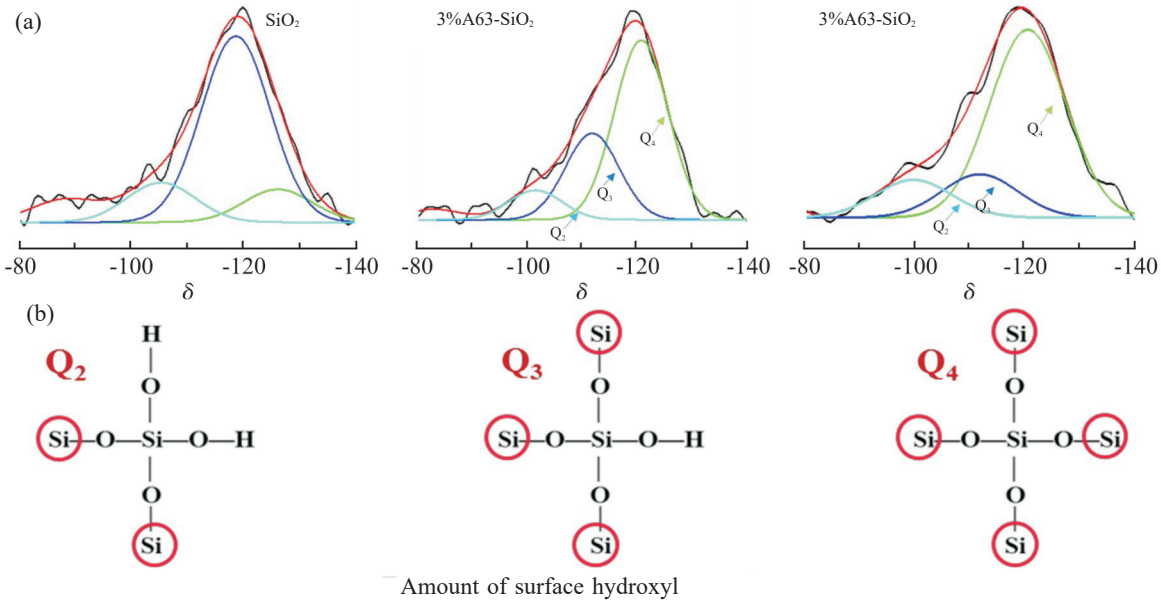


Fig. 2 (a) ^{29}Si CP/MAS NMR spectra of SiO_2 and modified SiO_2 with 3% and 5% A63; (b) schematic diagram of different silicon structural units of SiO_2

右。说明偶联剂改性后，Si2p 位能向低位能发生偏移[11]，其原因是在硅烷偶联剂水解的过程中生成的[—Si(OH)$_3$]基团与 SiO_2 表面的[Si—O—H]发生化学缔合而产生[Si—O—Si]键，使 Si 和 O 附近的电子云密度有所增加，电子屏蔽效应增强，故而 Si2p 结合能向低位能移动[12]。这也验证了相较于 3%偶联剂处理的样品，使用 5%处理的 SiO_2 表面接枝的官能团数更多。偶联剂质量分数为 7%时，Si2p 结合能有所增加（102.9 eV），这同样说明此时偶联剂水解后更多发生了自身的缩聚反应，与 SiO_2 表面 Si—OH 反应减少。

为进一步研究偶联剂对 SiO_2 表面化学结构的影响，选用纯 SiO_2 和偶联剂质量分数为 3%%和 5%改性 SiO_2 进行固体核磁分析[13]。Fig.2 为纯 SiO_2 和偶联剂质量分数为 3%和 5%改性 SiO_2 的 ^{29}Si CP/MAS NMR 的分峰谱图。如图所示，3 个样品均出现了 3 个结构特征峰，其中，δ(-100)附近的峰为 Q2 硅结构单元；δ(-110)附近的峰为 Q3 硅结构单元；δ(-120)附近的峰为 Q3 硅结构单元。Q2，Q3 和 Q4 代表 SiO_2 不同的表面硅羟基键合情况，具体结构如 Fig.2(b)所示。计算了不同硅结构单元的比值如 Tab.1 所示，改性 SiO_2 的 Q2，Q3 的含量与纯 SiO_2 相比有所降低，而 Q4 含量明显多于纯 SiO_2，且随着偶联剂质量分数由 3%增加到 5%，Q4 比值从 60.77%增加到 69.87%。说明 SiO_2 表面改性后，偶联剂与 SiO_2 表面硅结构单元 Q2 和 Q3 反应，使得表面羟基量减少，Q4 的含量增加。且随着偶联剂质量分数增大到 5%，Q2 和 Q3 与偶联剂反

Tab. 1 Content ratio of different silicon structural units

Sample	Q2/%	Q3/%	Q4/%
SiO_2	15.57	66.14	18.29
3% A63-SiO_2	9.99	29.24	60.77
5% A63-SiO_2	14.03	16.12	69.87

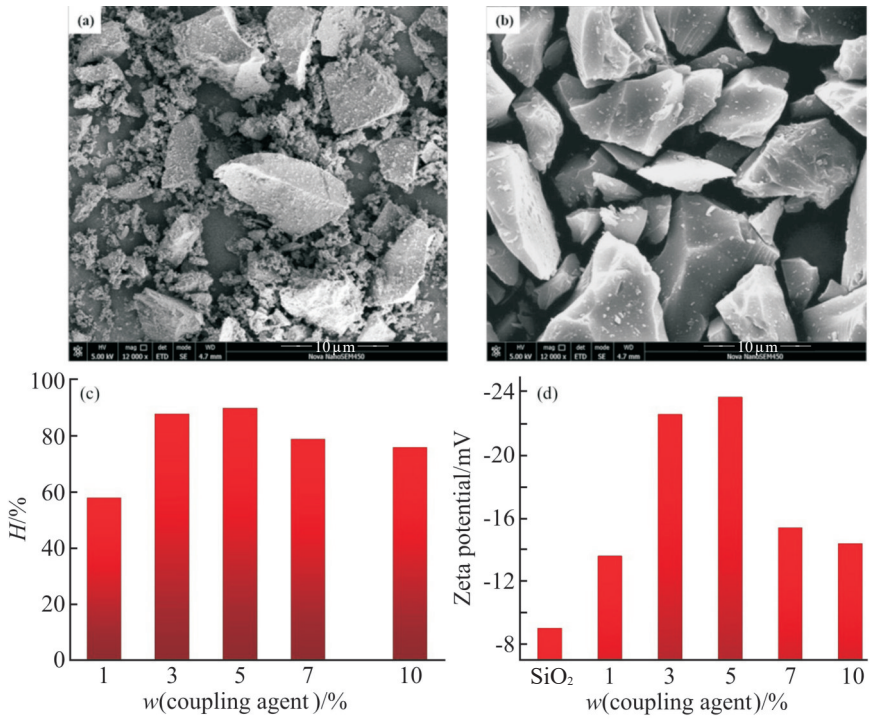


Fig. 3 (a) SEM micrograph of pure SiO_2; (b) SEM micrograph of silane treated SiO_2; (c) influence of amount of A63 on activity; (d) Zeta potential of SiO_2 and modified SiO_2 with different contents of A63

应更多，Q4含量进一步增加。

2.2 偶联剂含量对SiO_2分散性的影响

通过SEM观察偶联剂改性前SiO_2的微观形貌，如Fig.3(a)所示，可以观察到纯SiO_2颗粒团聚现象严重。而Fig.3(b)显示了改性SiO_2的SEM图像，发现经硅烷偶联剂处理后，SiO_2颗粒表面变得更光滑，分散性更好，颗粒团聚现象更少，说明偶联剂处理有利于改善SiO_2的分散性。

进一步研究偶联剂含量的变化对SiO_2的分散性影响，对改性后的SiO_2进行活化率分析，Fig.3(c)为偶联剂含量与活化度之间的关系。可以看出，随着A63的含量增加，SiO_2活化率呈现出先上升后下降的趋势。其中A63质量分数为5%时，活化指数达到了90%，为最高。而A63质量分数大于5%时，活化率有所下降，说明在该条件下SiO_2在水中的分散性变差。

本次选取的研究基体为碱性的PTFE乳液（pH=8~10），在溶液酸碱性不发生改变的情况下，可通过Zeta电位的绝对值来判断悬浮颗粒的分散性和流动性，当所处环境Zeta电位绝对值较高时，颗粒表面所带电荷较多，由于静电斥力的作用，其分散性和流动性较好[14]，Fig.3(d)展示了添加不同含量偶联剂处理后的SiO_2之后乳液的Zeta电位。未改性的SiO_2的Zeta电位绝对值比改性SiO_2的小，由于纯SiO_2表面裸露着较多的羟基，而羟基间易引发氢键相互作用，因此纯SiO_2颗粒更倾向于团聚，团聚体比表面积变小，表面所带电荷较少，分散性较差，这也与Fig.3(a)表征现象相符。改性后的SiO_2的绝对值均大于纯SiO_2，且偶联剂质量分数从1%增加到5%时，SiO_2的Zeta电位绝对值从13.6 mV增加到23.7 mV，说明此时SiO_2的分散性变好，这主要是由于改性SiO_2表面

成功接枝了偶联剂的水解后产物,而由于偶联剂含有独特的长链结构易在SiO_2表面形成一个包裹层,增加了颗粒与颗粒之间的间隙,因此团聚现象减弱,分散性变好。而当偶联剂含量继续增加时,SiO_2的Zeta电位绝对值呈现出下降趋势,偶联剂质量分数为10%时,Zeta电位绝对值降至14.4 mV,结合SiO_2表面XPS与核磁表征结构可知,这是由于偶联剂自聚导致SiO_2表面接枝官能团含量降低所致。

2.3　偶联剂含量对SiO_2/PTFE复合薄膜力学性能的影响

采用DMA对复合膜储能模量进行研究,结果如Fig.4(a)所示。随着温度的升高,所有复合膜的储能模量均出现了下降,这是因为温度升高促进了PTFE分子链的运动,分子链排列紧密程度下降。其中改性后SiO_2/PTFE的储能模量在0~250 ℃温度范围内均高于未改性SiO_2/PTFE复合薄膜,当偶联剂质量分数为5%时,SiO_2/PTFE复合薄膜储能模量最高。这是因为改性SiO_2表面接枝的硅烷偶联剂使SiO_2与PTFE的界面相容性变好,阻碍了PTFE分子链的运动,因此复合薄膜的储能模量增加、刚性提高[15]。而偶联剂质量分数大于5%时,由于SiO_2表面接枝上的偶联剂数量变少,故而影响了填料与基体的界面相互作用,使薄膜储能模量下降。

Fig.4(b)为不同含量偶联剂对SiO_2/PTFE复合薄膜力学性能影响。复合薄膜的拉伸强度和断裂伸长率随着偶联剂含量的变化有着相同的变化趋势,在质量分数从0%增大到5%时,拉伸强度由4.35 MPa增加到5.33 MPa,增加幅度为22.5%;同时断裂伸长

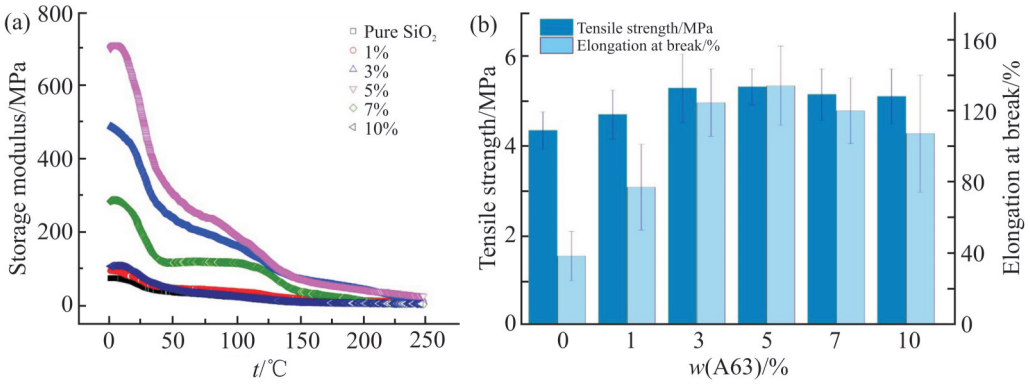


Fig. 4　(a) Storage modulus and (b) mechanical properties of SiO_2/PTFE composite films

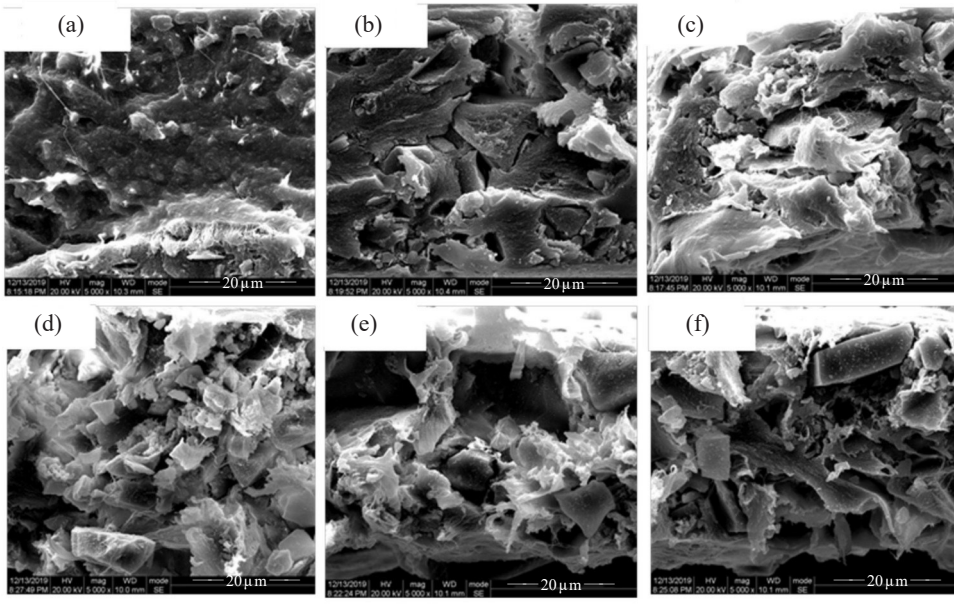


Fig. 5　Tensile section of PTFE/SiO_2 composite films with different silane coupling agent contents: (a) pure SiO_2; (b) 1%; (c) 3%; (d) 5%; (e) 7%; (f) 10%

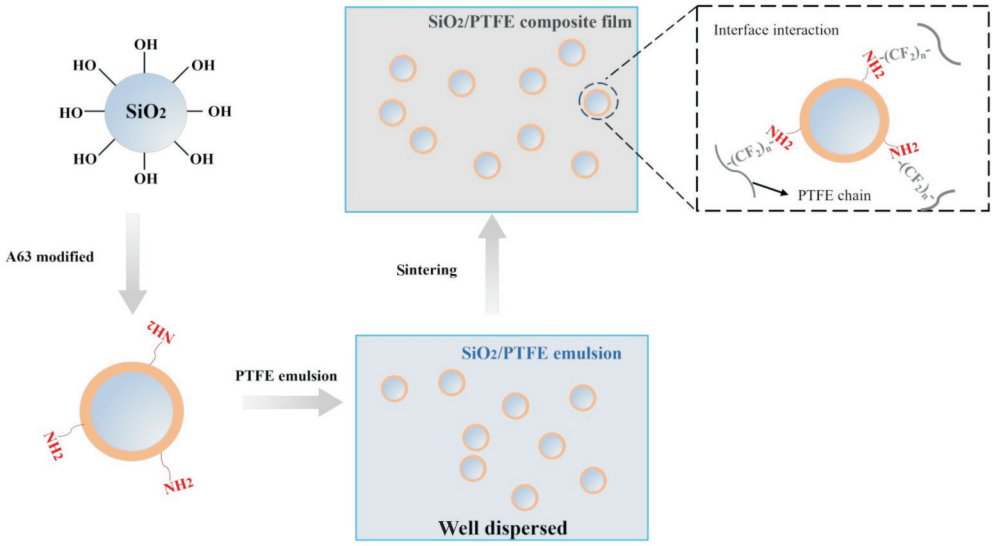


Fig. 6 Diagram of interface interaction between modified SiO_2 and PTFE

率由38.2%增加到134.0%，增加幅度为252.1%。这可能是因为SiO_2改性后PTFE与SiO_2的界面得到了优化，界面相容性变好。而当偶联剂继续增加时，拉伸强度和断裂伸长率均出现小幅度下降，偶联剂质量分数达到10%时，拉伸强度降至5.12 MPa、断裂伸长率降至107.1%。说明偶联剂含量过大带来的自聚反应阻碍了SiO_2表面官能团的接枝程度，界面强度降低，导致材料力学性能下降。

为了进一步研究偶联剂含量对SiO_2/PTFE复合薄膜力学性能影响，采用SEM观察未改性和不同偶联剂改性的SiO_2/PTFE复合薄膜拉伸断面。由于PTFE分散液中的悬浮颗粒均为尺寸达亚微米级（50~200 nm）的凝聚颗粒，而这些粒子是由若干个分子链折叠形成的初级粒子组成，当受到外界剪切力作用时，分子链朝受力方向展开形成微细纤维和韧带而发生大面积变形，即为PTFE原纤化现象。Fig.5为未改性和不同偶联剂改性的SiO_2/PTFE复合薄膜拉伸断面形貌。不同处理条件下的复合薄膜拉伸断面出现不同程度的成纤现象。其中偶联剂质量分数为5%时，拉伸断面成纤程度最大，呈现出典型的韧性断裂。而未改性SiO_2和偶联剂质量分数为1%时，薄膜拉伸断面较为平滑，成纤较少，更倾向于脆性断裂。拉伸断面成纤程度的变化与SiO_2/PTFE复合薄膜力学性能表征结果相对应。

基于以上实验结果，对SiO_2、偶联剂以及PTFE基体三者界面作用机理进行分析，其示意图如Fig.6所示。未改性的表面SiO_2表面含有大量裸露的羟基，能与水解后硅烷偶联剂的硅羟基之间形成Si—O—Si化学键相互作用，使得硅烷偶联剂包覆在SiO_2表面。经过硅烷偶联剂改性后的SiO_2在水相的PTFE乳液中能实现良好的分散，有效减少了填料的团聚。经过高温烧结后SiO_2表面的—NH_2官能团能与PTFE分子链间产生类氢键的分子间相互作用力[9]，有效提升了界面强度，从而促进了复合膜力学性能的提升。

3 结论

针对传统加工成型过程中强应力场作用和填料包裹性差的问题，本文创新型地采用了PTFE乳液与功能性填料复配成膜方式，并通过填料的表面改性成功解决了PTFE与SiO_2界面相容性难题，实现了PTFE/SiO_2复合膜的力学性能明显提升。当偶联剂质量分数为5%时，PTFE/SiO_2复合薄膜力学性能最优，在0~250 ℃具有最高的储能模量，拉伸强度由4.35 MPa增加至5.33 MPa，断裂伸长率由38.2%增加至134.0%。本研究通过乳液成型成功制备了具有均匀致密结构、抗蠕变性和力学性能优异的PTFE填充膜材料，为提高PTFE/SiO_2界面强度、PTFE高性能化和多功能化膜材料的加工制造提供新思路和新方法。

参考文献:

[1] Islam Z, Fu Y, Deb H, *et al*. Polymer-based low dielectric constant and loss materials for high- speed communication network: dielectric constants and challenges[J]. European Polymer Journal, 2023, 200: 112543.

[2] Guo Q, Huang Y, Xu M, *et al*. PTFE porous membrane technology: a comprehensive review[J]. Journal of Membrane Science, 2022, 664: 121115.

[3] Jiang T, He P, Wang G, *et al.* Solvent- free synthesis of thin, flexible, nonflammable garnet- based composite solid electrolyte for all- solid- state lithium batteries[J]. Advanced Energy Materials, 2020, 10: 1903376.

[4] Martins S A, Dias F W, Nunes L S, *et al*. Mechanical characterization of silica reinforced-PTFE matrix composites[C]// Guagliano M, Vergani L. 11th International Conference on the Mechanical Behavior of Materials (ICM11). Amsterdam: Elsevier Science, 2011.

[5] 张瑶, 陈蓉, 郭少云. SiO_2/聚四氟乙烯复合薄膜的制备及力学性能[J]. 复合材料学报, 2019, 36(3): 624-629.
Zhang Y, Chen R, Guo S Y. Preparation and mechanical properties of SiO_2/polytetrafluoroethylene composite films[J]. Acta Materiae Compositae Sinica, 2019, 36(3): 624-629.

[6] 卢国库, 龚俊, 高贵, 等. 聚醚醚酮和纳米二氧化硅改性聚四氟乙烯复合材料的摩擦学性能[J]. 高分子材料科学与工程, 2022, 38(8): 168-176.
Lu G K, Gong J, Gao G, *et al.* Tribological properties of polyetheretherketone and nano-SiO_2 filled polytetrafluoroethylene composites[J]. Polymer Materials Science & Engineering, 2022, 38(8): 168-176.

[7] 周茜, 张瑶, 陈蓉, 等. SiO_2表面改性对高填充SiO_2/聚四氟乙烯复合薄膜性能的影响[J]. 复合材料学报, 2020, 37(9): 2144-2151.
Zhou Q, Zhang Y, Chen R, *et al*. Effect of surface modification of SiO_2 on properties of highly filled SiO_2/polytetrafluoroethylene composite films[J]. Acta Materiae Compositae Sinica, 2020, 37 (9): 2144-2151.

[8] Wang Y, Yang Z, Wang H, *et al.* Investigation of PTFE-based ultra-low dielectric constant composite substrates with hollow silica ceramics[J]. Journal of Materials Science- Materials in Electronics, 2022, 33: 4550-4558.

[9] Yuan Y, Lin H, Yu D, *et al*. Effects of perfluorooctyltriethoxysilane coupling agent on the properties of silica filled PTFE composites [J]. Journal of Materials Science- Materials in Electronics, 2017, 28: 8810-8817.

[10] Wang H, Chen E, Jia X, *et al.* Superhydrophobic coatings fabricated with polytetrafluoroethylene and SiO_2 nanoparticles by spraying process on carbon steel surfaces[J]. Applied Surface Science, 2015, 349: 724-732.

[11] Liu Z, Xie Y, Yang L, *et al*. The mechanical strength of sulphoaluminate cement- gypsum composite material reinforced with polypropylene fibers synergistically modified by KH570 and nano-SiO_2[J]. Composite Interfaces, 2022, 29: 1249-1265.

[12] 解小玲, 郭睿劼, 贾虎生, 等. KH-550改性纳米二氧化硅的研究[J]. 太原理工大学学报, 2008 ,39(1): 26-28.
Xie X X, Guo R J, Jia H S, *et al*. Study of nano- scale silica modification by KH- 550[J]. Journal of Taiyuan University of Technology, 2008, 39(1): 26-28.

[13] An H, Liu Q, An J, *et al*. Coupling two- dimensional fillers with polymer chains in solid polymer electrolyte for room-temperature dendrite- free lithium- metal batteries[J]. Energy Storage Materials, 2021, 43: 358-364.

[14] Li J, Peng H, Liu K, *et al.* Polyester nanofiltration membranes for efficient cations separation[J]. Advanced Materials, 2024, 36: 2309406.

[15] Wu Y, Wei K, Zhang Y, *et al.* Fabrication of self- replenishing hydrophobic surfaces and self- cleaning coating based on self-crosslinkable PDMS- g- WPU emulsion[J]. Progress in Organic Coatings, 2023, 175: 107375.

Preparation and Performance Enhancement of Silicon Dioxide/ Polytetrafluoroethylene Composite Films by Emulsion Molding

Wei Gao, Qian Zhou, Jiabin Shen, Rong Chen, Shaoyun Guo

(*State Key Laboratory of Polymer Materials Engineering(Sichuan Universty), Polymer Research Institute of Sichuan University，Sichuan Provincial Engineering Laboratory of Plastic/Rubber Complex Processing Technology, Chengdu 610065, China*)

ABSTRACT: Polytetrafluoroethylene (PTFE) has become an important carrier for high frequency communication due to its excellent dielectric properties, and is usually compounded with inorganic fillers to improve its mechanical properties. However, due to the extremely low surface energy of PTFE itself, the interface between inorganic fillers and PTFE is extremely poor, and it is difficult to achieve the molding of high-filled composite film materials through traditional turning or calendering. Therefore, this study attempted to use PTFE emulsion with smaller size and flexible interface as matrix, and silicon dioxide (SiO_2) as inorganic fillers to study the effect of surface modification of inorganic particles on the dispersion, interface and mechanical properties of the composites. It is found that when the mass fraction of coupling agent is 5%, the mechanical properties of SiO_2/ PTFE composite film (80 μm) are the best, the tensile strength increases from 4.35 MPa to 5.33 MPa, and the elongation at break increases from 38.2% to 134.0%. This study provided a new method for improving the interfacial strength of PTFE/SiO_2 and preparing PTFE composite film materials.

Keywords: polytetrafluoroethylene; silicon dioxide; silane coupling agent; mechanical property