



柔性 $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.53}\text{Ti}_{0.47})\text{O}_3$ 薄膜的高温铁电特性

李敏 时鑫娜 张泽霖 吉彦达 樊济宇 杨浩

Ferroelectricity of flexible  $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.53}\text{Ti}_{0.47})\text{O}_3$  thin film at high temperature

Li Min Shi Xin-Na Zhang Ze-Lin Ji Yan-Da Fan Ji-Yu Yang Hao

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 68, 087302 (2019) DOI: 10.7498/aps.68.20181967

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181967>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

冲击波作用下 $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.95}\text{Ti}_{0.05})\text{O}_3$ 铁电陶瓷去极化后电阻率动态特性

Dynamic resistivity of  $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.95}\text{Ti}_{0.05})\text{O}_3$  depolarized ferroelectric under shock wave compression

物理学报. 2017, 66(4): 047201 <https://doi.org/10.7498/aps.66.047201>

极化状态与方向对单轴压缩下 $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.95}\text{Ti}_{0.05})\text{O}_3$ 铁电陶瓷畴变与相变行为的影响

Effects of poling state and direction on domain switching and phase transformation of  $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.95}\text{Ti}_{0.05})\text{O}_3$  ferroelectric ceramics under uniaxial compression

物理学报. 2017, 66(2): 024601 <https://doi.org/10.7498/aps.66.024601>

多孔未极化 $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.95}\text{Ti}_{0.05})\text{O}_3$ 铁电陶瓷单轴压缩力学响应与相变

Mechanical properties and phase transformation of porous unpoled  $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.95}\text{Ti}_{0.05})\text{O}_3$  ferroelectric ceramics under uniaxial compression

物理学报. 2015, 64(13): 134601 <https://doi.org/10.7498/aps.64.134601>

微秒脉冲电场下 $\text{Pb}_{0.99}(\text{Zr}_{0.95}\text{Ti}_{0.05})_{0.98}\text{Nb}_{0.02}\text{O}_3$ 陶瓷击穿过程电阻变化规律

Resistance of  $\text{Pb}_{0.99}(\text{Zr}_{0.95}\text{Ti}_{0.05})_{0.98}\text{Nb}_{0.02}\text{O}_3$  under high voltage microsecond pulse induced breakdown

物理学报. 2017, 66(11): 117701 <https://doi.org/10.7498/aps.66.117701>

探索基于人工超晶格 $\text{LaFeO}_3\text{-YMnO}_3$ 和自然超晶格 $n\text{-LaFeO}_3\text{-Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ 薄膜多铁性

Exploring multiferroic materials based on artificial superlattice  $\text{LaFeO}_3\text{-YMnO}_3$  and natural superlattice  $n\text{-LaFeO}_3\text{-Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$  thin films

物理学报. 2015, 64(9): 097502 <https://doi.org/10.7498/aps.64.097502>

$\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$ 量子阱与体材料的1 MeV电子束辐照光致发光谱研究

Photoluminescence spectra of 1 MeV electron beam irradiated  $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{InP}$  quantum well and bulk materials

物理学报. 2015, 64(15): 154217 <https://doi.org/10.7498/aps.64.154217>

柔性  $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.53}\text{Ti}_{0.47})\text{O}_3$  薄膜的高温铁电特性\*

李敏 时鑫娜 张泽霖 吉彦达 樊济宇 杨浩†

(南京航空航天大学理学院, 南京 210016)

(2018年11月5日收到; 2019年1月31日收到修改稿)

随着柔性电子产品的迅速发展, 具有优异铁电和压电性的  $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.53}\text{Ti}_{0.47})\text{O}_3$  (PZT) 薄膜在柔性的非易失性存储器、传感器和制动器等器件中有广泛的应用前景. 同时, 由于外部环境越来越复杂, 具有高温稳定特性的材料和器件受到越来越多的关注. 本文在耐高温的二维层状氟晶云母衬底上, 用脉冲激光沉积技术制备出外延的 PZT 薄膜, 并通过机械剥离的方法, 得到柔性的外延 PZT 薄膜. 研究了 Pt/PZT/SRO 异质结的铁电和压电性及其高温特性, 发现样品表现出优越的铁电性, 剩余极化强度 ( $P_r$ ) 高达  $65 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ , 在弯曲  $10^4$  次后其铁电性基本保持不变, 且样品在  $275 \text{ }^\circ\text{C}$  高温时仍然保持良好的铁电性. 本文为柔性 PZT 薄膜在航空航天器件中的应用提供了实验基础.

**关键词:**  $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.53}\text{Ti}_{0.47})\text{O}_3$ , 柔性薄膜, 耐高温, 铁电性

**PACS:** 73.21.Ac, 73.61.-r, 73.90.+f

**DOI:** 10.7498/aps.68.20181967

## 1 引言

随着智能电子产品的快速发展, 柔性电子产品以便携性、可弯曲性和人性化等优势<sup>[1,2]</sup>引起了长期关注. 在可穿戴设备、非易失性存储器<sup>[3]</sup>、微机电系统等应用中, 与有机铁电材料相比, 无机钙钛矿盐锆钛酸铅 ( $\text{Pb}(\text{Zr}_{1-x}\text{Ti}_x)\text{O}_3$ , PZT) 以其快速的极化翻转、高压电系数以及高热稳定性等优势而得到密切关注<sup>[4-6]</sup>. 因此, 在柔性衬底上生长的 PZT 薄膜<sup>[7]</sup>代表了目前 PZT 材料的发展趋势, 存在非常大的潜力. 然而, 柔性铁电薄膜的制备还存在很多问题. 一方面, 目前大多数铁电薄膜通常都生长在  $\text{SrTiO}_3$ <sup>[8]</sup>,  $\text{LaAlO}_3$ ,  $\text{Si}$ <sup>[9]</sup> 等刚性衬底上, 导致其压电系数较低且不可弯曲; 另一方面, 虽然已有 PZT 薄膜在耐高温刚性衬底上生长并转移到柔性聚合物衬底上<sup>[10,11]</sup>, 但转移的过程相当繁复; 而 PZT 薄膜

在传统的柔性聚合物衬底上生长则会受高温生长条件的限制. 因此, 必须选择合适的柔性衬底. 氟晶云母 ( $\text{KMg}_3(\text{AlSi}_3\text{O}_{10})\text{F}_2$ , mica) 由于其优异的耐高温特性、柔韧性、化学惰性以及高透明性而成为目前备受关注的柔性衬底材料. 最近, 很多关于范德瓦耳斯力外延生长氧化物异质结的研究<sup>[12,13]</sup>, 为 PZT 在氟晶云母上的外延生长提供了有力的基础<sup>[14,15]</sup>.

尽管目前已经成功地在云母衬底上制备出了柔性 PZT 外延薄膜, 但是由于二维材料的尺寸效应、界面效应等限制了其铁电性<sup>[16]</sup>, 使得柔性 PZT 外延薄膜的剩余极化强度、居里温度等都低于块体材料. 同时, 目前关于器件的研发正朝着适应更恶劣工作环境的方向发展. 比如在目前备受关注的航空航天领域, 其工作环境相对比较恶劣. 在地球周围的轨道上, 航天器材料及其结构均需适应高至  $180 \text{ }^\circ\text{C}$  的工作环境<sup>[17]</sup>, 这就要求薄膜材料的居里温度要大于  $360 \text{ }^\circ\text{C}$ , 且材料的高温特性和稳定

\* 国家自然科学基金 (批准号: 11774172, U1632122, 51602152)、中央高校基本科研业务费专项基金 (批准号: NE2016102, NP2017103) 和南京航空航天大学研究生创新基地 (实验室) 开放基金 (批准号: kfj20170801) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yanghao@nuaa.edu.cn

性是决定其在恶劣环境中应用的关键因素. 因此, 本文采用脉冲激光沉积技术在耐高温、化学稳定、可剥离的 mica 上制备出了柔性的 PZT 外延薄膜, 对其铁电性和压电性进行测试和分析, 并研究了其高温特性, 提高了柔性 PZT 薄膜能承受的最高温度.

## 2 实验方法

采用脉冲激光沉积技术 (PLD) 以未剥离的刚性氟晶云母 (mica) 为衬底, BaTiO<sub>3</sub>(BTO) 为缓冲层, SrRuO<sub>3</sub>(SRO) 为底电极, 利用腔内的多靶支架, 实现逐层沉积. 待 SRO/BTO 层沉积完成后, 将 SRO 层遮住一部分用来做后续铁电测试的底电极, 待 PZT 层沉积完成后, 使衬底保持 3 °C/min 的速率慢速降温, 成功制备出外延的 PZT/SRO/BTO/mica 薄膜. 实验条件见表 1. 其中 PZT, SRO, BTO 层的厚度分别为 500, 33, 30 nm.

用 X 射线衍射仪 (XRD, 型号为 Empyrean) 来分析薄膜的相结构; 用原子力显微镜 (AFM, 型号为 MFP-3D-SA) 来分析薄膜的表面形貌, 并利用其中的 PFM 模块来测量薄膜的压电性. 利用多靶磁控、离子束共溅射仪 (型号为 MS/IBS-3) 在样品表面上镀铂 (Pt) 电极, 电极面积为  $7.065 \times 10^{-4} \text{ cm}^2$ ; 用铁电测试仪 (型号为 Precision Multi-ferroic II 100 V) 通过引线法来测量薄膜的铁电性, 并通过外部变温台 (型号为 HFS 600E) 与铁电测试仪的连接来实现高温下铁电性的测试. 用机械剥离的方法<sup>[15,18]</sup>得到柔性 PZT 薄膜, 用激振台 (型号为 HEV-20) 将其弯曲  $10^4$  次后并研究其铁电性的变化.

## 3 结果与分析

氟晶云母是一种可分割的层状硅酸盐衬底, 当把氟晶云母衬底剥离到几十个微米厚时便可以弯曲. 图 1 是将氟晶云母衬底用机械的方法剥离后的样品的柔性展示. 从图中可以看出, PZT 薄膜便可

以随意弯曲, 表现出样品良好的柔性.

为了确定样品的单一取向性以及外延关系, 利用 XRD 对样品进行扫描, 图 2 是 PZT/SRO/BTO/mica 薄膜的 XRD 衍射图. 图 2(a) 是薄膜的  $\theta$ - $2\theta$  衍射图, 可以看出除了衬底的衍射峰外仅出现 PZT(111), SRO(111), BTO(111) 衍射峰, 根据布拉格衍射公式:  $2d\sin\theta = n\lambda$ , 可以推算出  $d_{111}(\text{PZT}) = 2.362 \text{ \AA}$ ,  $d_{111}(\text{SRO}) = 2.264 \text{ \AA}$ ,  $d_{111}(\text{BTO}) = 2.310 \text{ \AA}$ , 由此可以得到 PZT, SRO 和 BTO 面外沿 [111] 取向所受应变分别 0.62%, 0.04% 和 0.78%, 所以在氟晶云母上生长的 PZT/SRO/BTO 沿面外 [111] 方向基本不受应力作用. 面外  $\theta$ - $2\theta$  衍射图表明利用 PLD 技术在 mica 衬底上成功制备出了沿 [111] 取向的 PZT 薄膜. 图 2(b) 是薄膜的  $\phi$  扫描图, 说明样品是外延生长的. 且 PZT, SRO, BTO, mica 的面外外延关系为 PZT[111]//SRO[111]//BTO[111]//mica[001], 面内外延关系为 PZT(011)//SRO(011)//BTO(011)//mica(101).

利用 AFM 对 PZT 薄膜的表面形貌进行分析, 结果如图 3(a) 所示. 从图中可以看出薄膜样品表面平整, 没有明显的大颗粒凸起, 颗粒均匀, 均方根粗糙度约为 3.726 nm. PZT 作为有着优异铁电性的材料, 其在传感器中的应用中主要是利用其快速的极化切换以及较高的剩余极化强度 ( $P_r$ ). 为了研究薄膜的铁电性, 我们首先利用压电力显微镜 (PFM) 通过导电探针施加电场来表征 PZT 的微观铁电性. 图 3(b) 所示, 在 PZT 层  $3 \mu\text{m} \times 3 \mu\text{m}$  的正方形区域施加 +10 V 的偏压使之极化, 然后在  $1.5 \mu\text{m} \times 1.5 \mu\text{m}$  的区域内施加 -10 V 的偏压使之进行第二次极化. 两个区域显示出边界清晰的亮暗对比, 黄色部分表示极化向上, 深色部分表示极化向下, 表明 PZT 薄膜中的电极化在正电压的作用下向上翻转, 在负电压的作用下向下翻转. 结果显示 PZT 薄膜的极化是可切换的, 而且此异质结局部的铁电性是均一的. 为了能更直观地探究 PZT 薄膜中极化翻转的角度, 在图 3(b) 选择一条数据如图 3(c) 所示, 可以看出在正负偏压的作用下, 相位

表 1 脉冲激光沉积技术制备 PZT/SRO/BTO 异质结的实验条件  
Table 1. Experimental conditions of PZT/SRO/BTO heterostructure by PLD.

制备工艺	沉积温度/°C	腔内气压/Pa	激光能量/mJ	脉冲频率/Hz	沉积时间/min
BTO	580	20	100	2	6
SRO	580	20	100	3	20
PZT	600	15	165	4	50

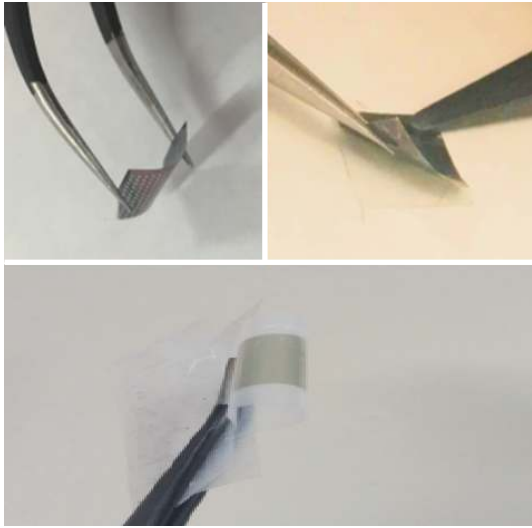


图 1 PZT 薄膜柔性展示

Fig. 1. Flexibility of PZT thin films.

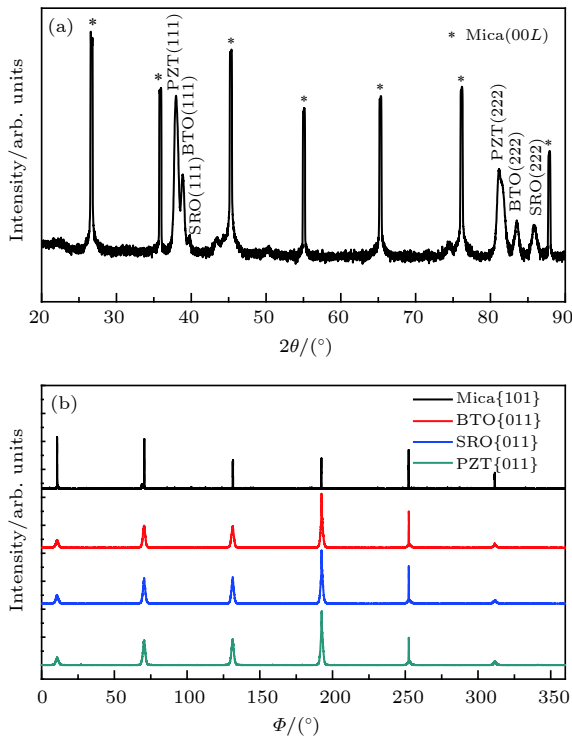


图 2 PZT 薄膜 XRD 图 (a)  $\theta$ - $2\theta$  衍射图; (b)  $\Phi$  扫描图

Fig. 2. (a)  $\theta$ - $2\theta$  scan and (b)  $\Phi$ -scans of PZT thin films.

存在  $180^\circ$  的翻转, 进一步说明 PZT 薄膜具有铁电性. 图 3(d) 显示了相位和振幅曲线, 相位曲线的  $180^\circ$  的翻转也证明了其具有铁电性. 从  $P$ - $E$  图中还可以看出 PZT 薄膜的矫顽场 ( $E_c$ ) 为  $100 \text{ kV/cm}$ . 图 3(d) 中的振幅蝶形曲线展示了未进行衬底剥离的样品在  $10 \text{ V}$  的外加电压下振幅随电场的变化, 考虑到 PZT 层的厚度约为  $500 \text{ nm}$ , 可以估算出样品的压电系数  $d_{33}$  约为  $30 \text{ pm/V}$ .

我们进一步探究了样品的宏观铁电性及高温特性, 结果如图 4 所示. 图 4(a) 为室温下样品在外加电场从  $360 \text{ kV/cm}$  到  $600 \text{ kV/cm}$  变化范围的电滞回线 ( $P$ - $E$ ). 通常情况下, 由于尺寸效应的限制, 薄膜的性能相较于块材较差. 然而, 由图 4(a) 可以看出样品的剩余极化强度 ( $P_r$ ) 约为  $65 \mu\text{C/cm}^2$ , 与块材相当 [19], 饱和极化强度 ( $P_s$ ) 高达  $80 \mu\text{C/cm}^2$ , 这些说明我们得到了高质量的 (111) 取向 PZT 薄膜. 矫顽场 ( $E_c$ ) 约为  $100 \text{ kV/cm}$ , 与 PFM 相位曲线中得到的矫顽场的大小相一致, 略小于文献 [13, 14] 中柔性 PZT 薄膜的数值. 同时样品的电滞回线比较饱和, 通常情况下饱和的电滞回线能够反映出其漏电流较小, 如果薄膜中的漏电流较大会造成电场施加不上, 同时还会引起热效应, 导致器件的疲劳和老化. 为了进一步测试样品的柔性, 我们将剥离后的 PZT 薄膜以  $1.5 \text{ cm}$  的弯曲半径弯曲  $10^4$  次后再次测试其铁电性, 结果如图 4(b) 所示. 样品在弯曲了  $10^4$  次后, 铁电性基本保持不变, 说明样品在可承受的外加电场范围内, 能够多次重复使用, 有利于资源节约型社会的建设.

随着外部环境变得越来越复杂, 使得新兴的柔性电子产品在恶劣环境中的应用得到越来越多的关注. 铁电材料应用在高温环境中工作的存储器时, 需要其在高温下仍然保持良好的铁电性. 为了研究样品在高温下的铁电性, 测试了从室温 ( $27^\circ\text{C}$ ) 到  $275^\circ\text{C}$  温度范围内的  $P$ - $E$  曲线, 结果如图 4(c) 所示. 从图中可以看出, 当温度达到  $275^\circ\text{C}$  高温时样品仍然保持良好的铁电性. 图 4(d) 是样品剩余极化强度 ( $P_r$ ) 和饱和极化强度 ( $P_s$ ) 随温度变化示意图, 结果表明样品的  $P_r$  和  $P_s$  在  $200^\circ\text{C}$  之前保持的很好, 尽管在  $200^\circ\text{C}$  到  $275^\circ\text{C}$  之间略有下降,  $P_r$  在  $275^\circ\text{C}$  下约为  $50 \mu\text{C/cm}^2$ ,  $P_s$  约为  $70 \mu\text{C/cm}^2$ , 数值仍然很可观. 在铁电薄膜的应用中, 其工作温度一般为居里温度的一半, 考虑到 PZT 块材的居里温度为  $380^\circ\text{C}$  [20], 并且与目前柔性 PZT 薄膜测量的最高温度  $175^\circ\text{C}$  [14] 对比, 我们制备的柔性 PZT 外延薄膜在耐高温这一方面有着优异的表现, 在  $275^\circ\text{C}$  高温环境中能够正常工作, 这一结果为柔性铁电存储器在高温环境中的应用提供了可能.

最近关于云母衬底上生长外延的功能氧化物薄膜 [21] 的研究中指出: 由于衬底和薄膜之间的弱相互作用, 在 mica 上生长的氧化物薄膜有较高的致密度, 使得 mica 能成为生长氧化物的合适的衬底. 在制备柔性 PZT 外延薄膜样品时, 以 BTO 为

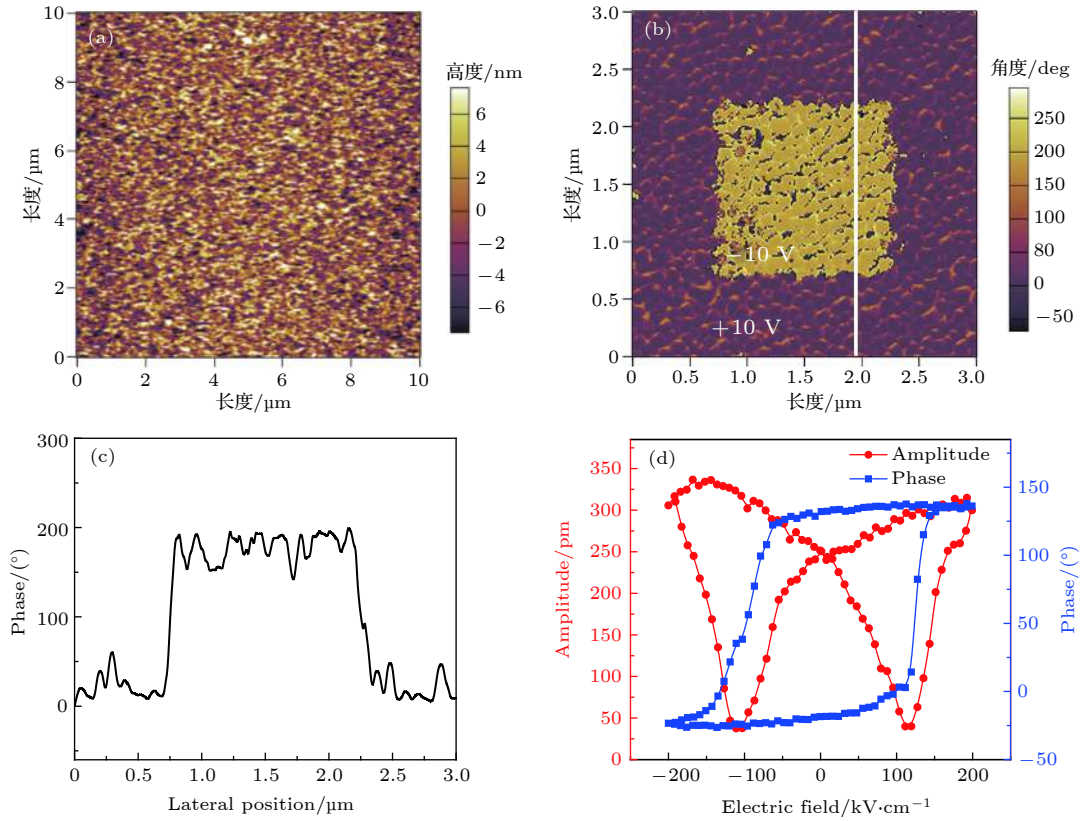


图 3 PZT 薄膜的 (a) 表面形貌图, (b) 局部极化翻转, (c) 图 (b) 中白线部分所对应的相位翻转示意图, (d) 振幅和相位曲线  
 Fig. 3. (a) Surface morphology, (b) local polarization flipping, (c) intuitive data for white line in (b), (d) representative local PFM amplitude and phase hysteresis loops of PZT thin films.

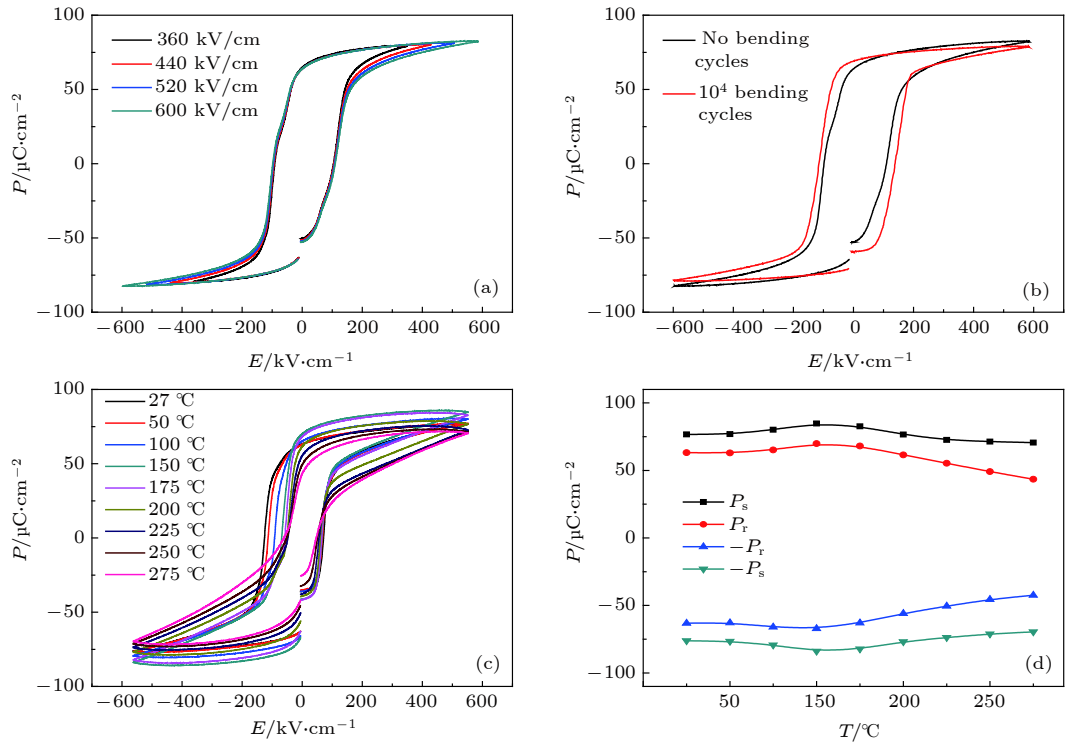


图 4 (a) 不同电场强度下的  $P$ - $E$ ; (b) 样品弯折  $10^4$  次后的  $P$ - $E$ ; (c) 不同温度下的  $P$ - $E$ ; (d) 样品  $P_r$  和  $P_s$  随温度变化的示意图  
 Fig. 4. (a)  $P$ - $E$  loops at various electric fields; (b)  $P$ - $E$  loops after bending for  $10^4$  times; (c)  $P$ - $E$  loops at various temperatures; (d) remnant and saturation polarizations as a function of temperature.

缓冲层, BTO 在 mica 衬底上实现了良好的外延生长. 在 BTO 层上生长的 SRO 也具有良好的外延性, 同时我们测试了 33 nm 厚度的 SRO 层的导电性, 其导电性较好. 在此基础上制备的 PZT 薄膜具有很好的外延性, 而外延的薄膜其性能更加优异. 此外, 顶部电极采用了常规的 Pt 金属电极和常规的制备工艺. 因此, 能够形成较好的 Pt/PZT/SRO 异质结结构, 使得其表现出优异的铁电性和高温铁电性.

## 4 结 论

采用脉冲激光沉积技术制备了高质量的柔性 PZT 外延薄膜, 并研究了样品的铁电性和高温特性. 实验结果显示样品具有优异的铁电性, 且样品在弯曲了  $10^4$  次后仍然保持原有的铁电性基本不变, 说明样品在可承受的外加电场范围内, 能够多次重复使用, 有利于资源节约型社会的建设. 而且, 薄膜在 275 °C 依然保持良好的铁电性, 极大地提高了柔性 PZT 薄膜能够承受的最高温度. 这一结果使得柔性 PZT 薄膜可以克服高温应用环境, 在器件的应用上有着广阔的前景.

## 参考文献

- [1] Forrest S R 2004 *Nature* **42** 8911
- [2] Hou P F, Yang K X, Ni K K, Wang J B, Zhang X L, Liao M, Zheng S Z 2018 *J. Mater. Chem. C* **6** 5193
- [3] Hoffman J, Pan X, Reiner J W, Walker F J, Han J P, Ahn C H, Ma T P 2010 *Adv. Mater.* **22** 295
- [4] Scott J F, Araujo C A P 1989 *Science* **246** 1400
- [5] Jaffe B, Roth R S, Marzullo S 2004 *J. Appl. Phys.* **2** 56
- [6] Kim D J, Maria J P, Kingon A I, Streiffer S K 2003 *J. Appl. Phys.* **93** 5568
- [7] Palneedi H, Yeo H G, Hwang G T, Annapureddy V, Kim J W, Choi J J, Susan T M, Ryu J 2017 *APL Mater.* **5** 0096111
- [8] Bao D H, Zhu X H, Alexe M, Dietrich H 2008 *J. Electroceram* **21** 72
- [9] Wang Y P, Zhou L, Lu X B, Liu Z G 2003 *Appl. Surf. Sci.* **205** 176
- [10] Rho J, Kim S J, Heo W, Lee N E, Lee H S, Ahn J H 2010 *Electron Dev. Lett.* **31** 1017
- [11] Bretos I, Jimenez R, Wu A, Kingon A I, Vilarinho P M, Calzada M L 2014 *Adv. Mater.* **26** 1405
- [12] Aday J, Mendoza M, Lado J L, Joshua O I 2016 *Chem. Mater.* **28** 4042
- [13] Chu Y H 2017 *npj Quantum Mater.* **2** 67
- [14] Jiang J, Bite Y, Huang C W, Do T H, Liu H J, Hsieh Y H, Ma C H, Jang C Y, Lai P W, Wu W W, Chen Y C, Zhou Y C, Chu Y H 2017 *Sci. Adv.* **3** 1700121
- [15] Gao W X, You L, Wang Y J, Yuan G L, Chu Y H, Liu Z G, Liu J M 2017 *Adv. Electron* **3** 1600542
- [16] Hu T, Kan E J 2018 *Acta Phys. Sin.* **67** 157701 (in Chinese) [胡婷, 阚二军 2018 物理学报 **67** 157701]
- [17] Tommaso G 2018 *Nature Mater.* **17** 846
- [18] Lin S H, Chui Y S, Li Y Y, Lau S P 2017 *FlatChem* **2** 15
- [19] Ohno T, Fukumitsu T, Honda T, Hirai S, Arai T, Sakamoto N, Wakiya N, Suzuki H, Matsuda T 2015 *Mater. Lett.* **181** 74
- [20] Izyumskaya N, Alivov Y I, Cho S J, Morkoc H, Lee H, Kang Y S 2013 *Crit. Rev. Solid Mater. Sci.* **32** 111
- [21] Li C I, Lin J C, Chu M W, Chen H W, Ma C H, Tsai C Y, Huang H W, Lin H J, Liu H L, Chiu P W, Chu Y H 2016 *Chem. Mater.* **28** 3914

# Ferroelectricity of flexible $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.53}\text{Ti}_{0.47})\text{O}_3$ thin film at high temperature<sup>\*</sup>

Li Min Shi Xin-Na Zhang Ze-Lin Ji Yan-Da Fan Ji-Yu Yang Hao<sup>†</sup>

(College of Science, Nanjing University of Aeronautics and Astronautics, Nanjing 210016, China)

(Received 5 November 2018; revised manuscript received 31 January 2019)

## Abstract

Recently, flexible electronic devices have attracted extensive attention due to their characteristics of flexibility, miniaturization and portability. Flexible functional oxide thin films with high performance and stability are the basis for high-performance flexible electronic devices. Perovskite lead zirconate titanate  $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.53}\text{Ti}_{0.47})\text{O}_3$  (PZT) at "morphotropic phase boundary" indicates excellent ferroelectricity and piezoelectricity, and has broad prospects in flexible non-volatile memories, sensors and actuators. Moreover, high-temperature stable flexible memories and sensors have received increasing attention due to the escalating complexity of the external environment. In the present work,  $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.53}\text{Ti}_{0.47})\text{O}_3/\text{SrRuO}_3/\text{BaTiO}_3$  (PZT/SRO/BTO) heterostructures are prepared by pulsed laser deposition on high temperature resistant two-dimensional layered fluorophlogopite mica substrates. Afterward, flexible epitaxial PZT thin films are obtained by mechanical stripping. The ferroelectricity, piezoelectricity and high temperature characteristics of PZT thin films are investigated. The thin films show superior ferroelectricity at room and high temperatures. At room temperature, the thin films exhibit excellent ferroelectricity with a remnant polarization ( $P_r$ ) of  $\sim 65 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ . A saturation polarization ( $P_s$ ) of  $\sim 80 \mu\text{C}/\text{cm}^2$  and a coercive field ( $E_c$ ) of  $\sim 100 \text{ kV}/\text{cm}$  are also observed. In addition, after bending the thin films to a 1.5 cm radius  $10^4$  times, their ferroelectricity does not show deterioration at room temperature. In order to study the ferroelectricity of PZT thin films at high temperature,  $P$ - $E$  loops from 27 °C to 275 °C are tested. The results show that the films still show excellent ferroelectricity with a  $P_r$  of  $\sim 50 \mu\text{C}/\text{cm}^2$  and a  $P_s$  of  $\sim 70 \mu\text{C}/\text{cm}^2$  at 275 °C. The present work provides a basis for the application of flexible epitaxial PZT thin film. Especially, the ferroelectricity of flexible PZT thin films at high temperature provides a possibility of obtaining high-temperature flexible electronic devices.

**Keywords:**  $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.53}\text{Ti}_{0.47})\text{O}_3$ , flexible films, high temperature, ferroelectric

**PACS:** 73.21.Ac, 73.61.-r, 73.90.+f

**DOI:** 10.7498/aps.68.20181967

<sup>\*</sup> Project supported by the National Nature Science Foundation of China (Grant Nos. 11774172, U1632122, 51602152), the Fundamental Research Funds for the Central Universities of Ministry of Education of China (Grant Nos. NE2016102, NP2017103), and the Foundation of Graduate Innovation Center in Nanjing University of Aeronautics and Astronautics, China (Grant No. kfjj20170801).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: yanghao@nuaa.edu.cn