

## Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 도핑에 따른 LATP 고체 전해질의 미세구조와 이온전도도의 상관관계

김성현, 황윤찬, 강성현, 박소연, 구상모, 신원호 

광운대학교 전자재료공학과

### The Microstructure and Ionic Conductivity of LATP Solid Electrolytes Doped with Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>

Seong-Hyeon Kim, Yun Chan Hwang, Sung Hyun Kang, So Yeon Park, Sang-Mo Koo, and Weon Ho Shin

Department of Electronic Materials Engineering, Kwangwoon University, Seoul 01890, Korea

(Received September 1, 2025; Revised September 14, 2025; Accepted September 18, 2025)

**Abstract:** The safety and stability concerns of liquid electrolytes in conventional lithium-ion batteries have accelerated the development of solid-state alternatives. NASICON type ceramics Li<sub>1.5</sub>Al<sub>0.5</sub>Ti<sub>1.5</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub> (LATP) offer promising properties, including high bulk ionic conductivity and good compatibility with lithium anodes. However, their practical application is hindered by grain boundary resistance and relatively low total ionic conductivity. This study investigates the effect of Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> doping on LATP to overcome these limitations. Doping with 5 wt% Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> improved the ionic conductivity to  $2.95 \times 10^{-4}$  S/cm by enhancing lattice structure, reducing grain boundary resistance, and suppressing the formation of secondary phase. Additionally, Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> positively influenced the sintering behavior, resulting in a denser, and more uniform microstructure. These enhancements suggest that Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-doped LATP is a strong candidate for next-generation all-solid-state lithium-ion batteries.

**Keywords:** LIB (lithium ion battery), ASSB (all solid state battery), Solid electrolyte, LATP, Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>

전기차와 모바일 기기의 보급 확산으로 인해 이차전지는 미래 에너지 활용의 핵심 기술로 부상하고 있다. 특히, 이차전지의 성능 향상은 화석연료 의존도를 줄이고 온실가스 배출 감축에도 기여할 수 있어 전 세계적으로 활발한 연구가 진행 중이다 [1,2]. 현재 상용화된 대부분의 이차전지는 리튬이온전지(lithium ion battery, LIB)로, 높은 에너지 밀도와 빠른 충전 속도, 대량생산의 용이성 등의 장점이 있다 [3].

하지만, 액체 전해질을 사용하는 기존 리튬이온전지는 충격이나 고온 환경에 노출될 경우 발화 또는 폭발 위험이 존재한다 [4-6]. 특히, 전기차에 탑재된 대형 배터리에서는 이러한 위험이 인명 피해로 이어질 수 있어 근본적인 안전성 개선이 요구된다. 이에 따라 액체 대신 고체 전해질을 적용한 전고체전지(all-solid-state lithium battery, ASSLB)가 차세대 전지 기술로 주목받고 있다 [7-9]. 전고체전지는 내열성과 구조적 안정성이 뛰어나 폭발 위험을 크게 낮출 수 있으며, 적층 구조 설계가 가능해 에너지 밀도 향상에도 유리하다.

고체 전해질은 전고체전지(all-solid-state lithium battery, ASSLB)의 핵심 구성 요소로, 액체 전해질을 대체하여 전지의 안전성과 에너지 밀도를 향상시키는 역할을 한다 [10,11]. 고체 전해질은 구성 성분 및 결정 구조에 따라 크

✉ Weon Ho Shin; [weonho@kw.ac.kr](mailto:weonho@kw.ac.kr)

Seong-Hyeon Kim and Yun Chan Hwang contributed equally to this work.

Copyright ©2026 KIEEME. All rights reserved.  
This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

계 산화물계, 황화물계, 고분자계로 구분된다. 산화물계 고체전해질은 화학적 안정성이 뛰어나고, 대기 중에서도 열화 없이 사용이 가능하다는 장점이 있다. 대표적인 산화물계 고체전해질로는 NASICON 구조의 LATP, 석류석(garnet) 구조의 LLZO, LISICON 구조의  $\text{Li}_{10}\text{GeP}_2\text{O}_{12}$  등이 있다. 이들은 구조적 강도와 열적 안정성이 우수하여 전고체전지의 기계적 안정성 확보에도 유리하다. 다만, 대부분 소결 온도가 높고, 이온전도도가 황화물계에 비해 낮은 편이며, 리튬 금속과의 계면 반응성이 존재한다는 단점이 있다 [12,13]. 황화물계 고체전해질은 액체 전해질에 비해 가거나 이를 상회하는 높은 이온전도도를 갖고 있으며, 상대적으로 낮은 온도에서도 소결이 가능하고 유연성이 있어 제조 공정에도 유리하다. 대표적인 황화물계 고체전해질로는  $\text{Li}_{10}\text{GeP}_2\text{S}_{12}$  (LGPS),  $\text{Li}_6\text{PS}_5\text{Cl}$  (argyrodite) 등이 있다. 그러나 수분에 매우 민감하여 대기 중에서는 황화수소( $\text{H}_2\text{S}$ )와 같은 유해 가스를 방출할 수 있어, 봉지화 및 제조 환경 관리가 필수적이라는 한계가 존재한다 [14,15]. 고분자계 고체전해질은 PEO (polyethylene oxide) 기반의 복합 고분자 전해질이 주로 사용되며, 유연하고 가공이 용이하며 비교적 저비용이라는 장점이 있다. 하지만 이온전도도가 낮고, 상온에서는 이온의 이동성이 부족하여 고온에서만 실질적인 성능을 나타낸다는 단점이 존재한다. 이에 따라 저온 환경에서 작동하는 이차전지에는 부적합하다 [16].

본 연구에서는 산화물계 고체전해질 중, 가장 효율적으로 판단되는 NASICON 구조의  $\text{Li}_{1.5}\text{Al}_{0.5}\text{Ti}_{1.5}(\text{PO}_4)_3$  (LATP)를 선택하였다. LATP는 대기 중에서도 우수한 화학적 안정성을 가지며, 구조적으로도 안정한 3차원 이온 전도 경로를 제공하는 결정 구조를 갖고 있다 [17-19]. 또한 합성이 비교적 용이하고, 도펀트를 통한 구조 조정 및 이온전도도 향상의 가능성이 크다는 점에서 본 연구의 목적에 부합하는 유망한 고체전해질로 판단된다. 그러나 LATP는 실용화를 위한 몇 가지 중요한 한계를 여전히 지니고 있다.  $\text{AlPO}_4$  및  $\text{LiTiPO}_5$ 와 같은 2차 상 형성과 입계 저항(grain boundary resistance)으로 인해 총 이온 전도도는 약  $10^{-5}$  S/cm 이하 수준에 머무르고 있다. 이러한 이유로 인하여, LATP의 이온 전도도 향상은 필연적이다. 그 중, 유망한 접근법 중 하나는 양이온 도펀트를 도입하여 결정 구조를 조절하고 입계 저항을 감소시켜 리튬 이온의 이동을 향상시키는 것이다 [20-22]. 특히 본 연구에서 진행한  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  도핑은 격자 왜곡을 유도하고, 2차상 생성을 억제하며, 소결 중 치밀화를 촉진시켜 입자의 크기를 조절하며 전기화학적 성능을 향상시킨다.

본 연구의 주된 목적은  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  도핑이 LATP의 이온 전

도도와 미세구조에 미치는 영향을 체계적으로 규명하는 데 있다. 다양한  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  농도를 평가함으로써, 구조적 안정성을 유지하면서 리튬 이온 수송을 극대화할 수 있는 최적 도핑 농도를 도출하고자 한다. 본 연구는  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ 가 이온 전도도를 향상시키고, 2차 상 생성을 억제하며, 전기화학적 성능을 개선하는 구체적인 메커니즘을 규명하는 데 중점을 두며, 차세대 고성능 리튬 이온 전지를 위한 고체 전해질 개발에 기여할 수 있는 실용적이고 상업화 가능한 설계 전략을 제시하고자 한다.

본 연구에서는  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ 의 첨가 농도에 따른 LATP 고체전해질의 물성 변화를 분석하기 위하여,  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ 를 각각 0, 1, 2, 4, 8 wt% 비율로 첨가한 LATP 분말을 고상 반응법(conventional solid-state reaction)을 통해 합성하였다. 원료물질로는  $\text{Li}_2\text{CO}_3$  (>99.0%),  $\text{Al}_2\text{O}_3$  (>99.0%),  $\text{TiO}_2$  (>99.0%),  $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$  (>99.0%),  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  (>99.0%)를 사용하였으며, 이들은 화학 양론비에 맞추어 계량하였다. 이온 전도도의 향상을 위해  $\text{Li}_2\text{CO}_3$ 를 10 wt% 과량 첨가하였으며, 이는 입계(grain boundary)에 결함 형태로 존재하는 과잉 리튬 이온의 농도를 증가시켜 입계 이온전도도 향상에 기여한다 [23]. 혼합된 시료는 고순도 에탄올과 지르코니아 볼을 함께 사용하여 300 rpm에서 24시간 동안 볼밀링하여 입자 크기를 미세화하고 조성의 균일한 분산을 유도하였다. 볼밀링 후에는 세라믹 체(sieve)를 이용하여 볼을 제거하였으며, 잔류 용매는 완전히 증발시킨 후 보관하였다. 이후, 분말 혼합물은  $100^\circ\text{C}$ 에서 20 rpm 조건으로 자력교반기를 이용해 추가로 교반하였으며, 이는 조성 간 균일한 분산을 더욱 향상시키기 위함이다. 교반이 완료된 분말은 실온에서 24시간 동안 제습 조건에서 건조하였으며, 이후  $900^\circ\text{C}$ 에서 4시간 동안 공기 중에서 하소(calcination)하였다. 하소된 분말을 직경 13 mm의 원형 펠렛 형태로 성형하기 위해 60 MPa의 하중을 가해 콜드 프레싱하였다. 이후 펠렛은  $1000^\circ\text{C}$ 에서 5시간 동안 공기 중 소결시켰다. 소결이 완료된 시편은 열충격 및 미세균열을 방지하기 위해 서서히 냉각시켰으며, 이후 소결된 펠렛은 두께를 일정하게 하기 위해 폴리싱을 진행하여 샘플을 준비하였다.

시편의 상 구조 및 결정상 형성을 확인하고, 합성 및 소결 과정 중 생성될 수 있는 2차 상의 존재 여부를 분석하기 위하여 X선 회절 분석(X-ray diffraction, XRD)을 수행하였다. 이를 통해 NASICON 결정 구조의 형성과 함께  $\text{AlPO}_4$  또는 Ta 기반 화합물과 같은 비의도적 2차 상의 생성 여부를 확인하였다. 또한, 시편의 입자 형상, 입자 크기 분포, 기공 구조 및 입계 성장 상태 등을 관찰하기 위해 주사전자현미경(scanning electron microscopy, SEM)을

이용하였다. 아울러, 에너지 분산 분광법(energy dispersive spectroscopy, EDS)을 병행하여 LATP 매트릭스 내에  $Ta_2O_5$  도펀트가 균일하게 분산되었는지 평가하였다. 이후, 전기화학 특성을 평가하기 위해 펠렛의 옆부분을 옆면을 카본 테이프를 감싸고 QUICK COATER (SC-701 Mk II)를 이용하여 진공 상태에서 펠렛 양쪽 표면에 Au를 증착했다. 전기화학적 임피던스(electrochemical impedance spectra, EIS) 분석은 Biologic사의 SP-240을 활용하여 0.1 Hz에서 7 MHz의 주파수 범위에서 분석을 진행하였다. 얻어진 나이퀴스트(Nyquist) 플롯은 등가회로 모델(equivalent circuit model)을 적용하여 분석하였으며, 이를 통해 각 시편의 전기화학적 전달 특성 및 계면 특성을 정량적으로 평가하였다.

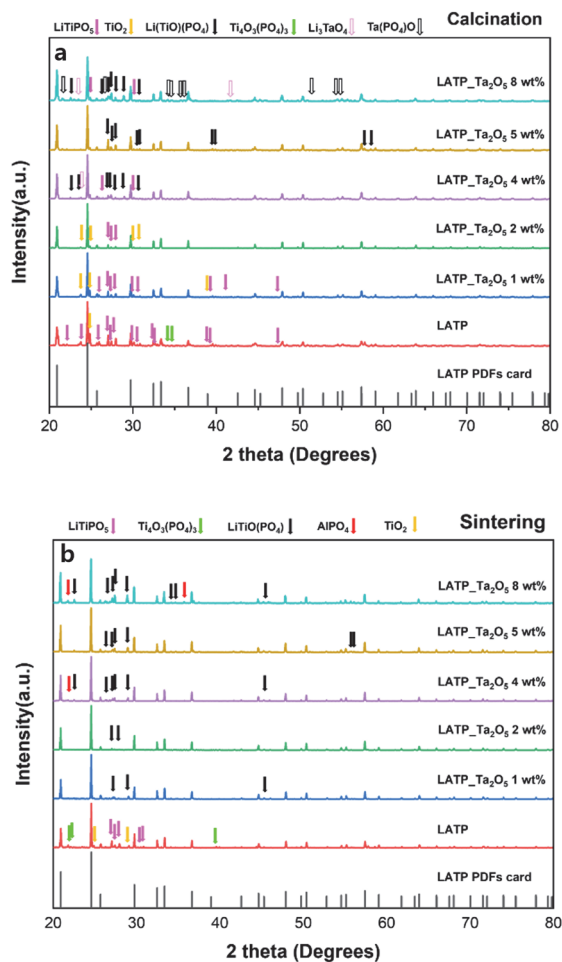
그림 1에 제시된 바와 같이, 모든 샘플은 NASICON 결정 구조를 유지하고 있었다. 특히, 새롭게 합성된 LATP +

5 wt%  $Ta_2O_5$  복합체에서는 2차 상의 존재가 가장 적게 관찰되었으며 [그림 1(b)],  $Ta_2O_5$ 에 해당하는 회절 피크는 그림 1(a) 및 1(b) 모두에서 검출되지 않았다. 이는 LATP 결정 격자 내에서  $Ti^{4+}$  이온이  $Ta^{5+}$  이온으로 성공적으로 치환되었음을 의미한다. 또한, XRD 피크가 좌측으로 미세하게 이동하는 현상이 관찰되었는데, 이는 이온 반지름 차이에 기인한 격자 왜곡으로 설명된다.  $Ta^{5+}$  (64 pm)는  $Ti^{4+}$  (60 pm)보다 이온 반지름이 크며, Bragg의 법칙에 따르면 이러한 치환은 격자 상수의 증가를 유도하여 피크를 좌측으로 이동시키게 된다 [24]. 이로 인한 격자 왜곡은 리튬 이온의 확산 경로를 확장시켜, 결과적으로 이온전도도 향상에 기여할 수 있다 [25].

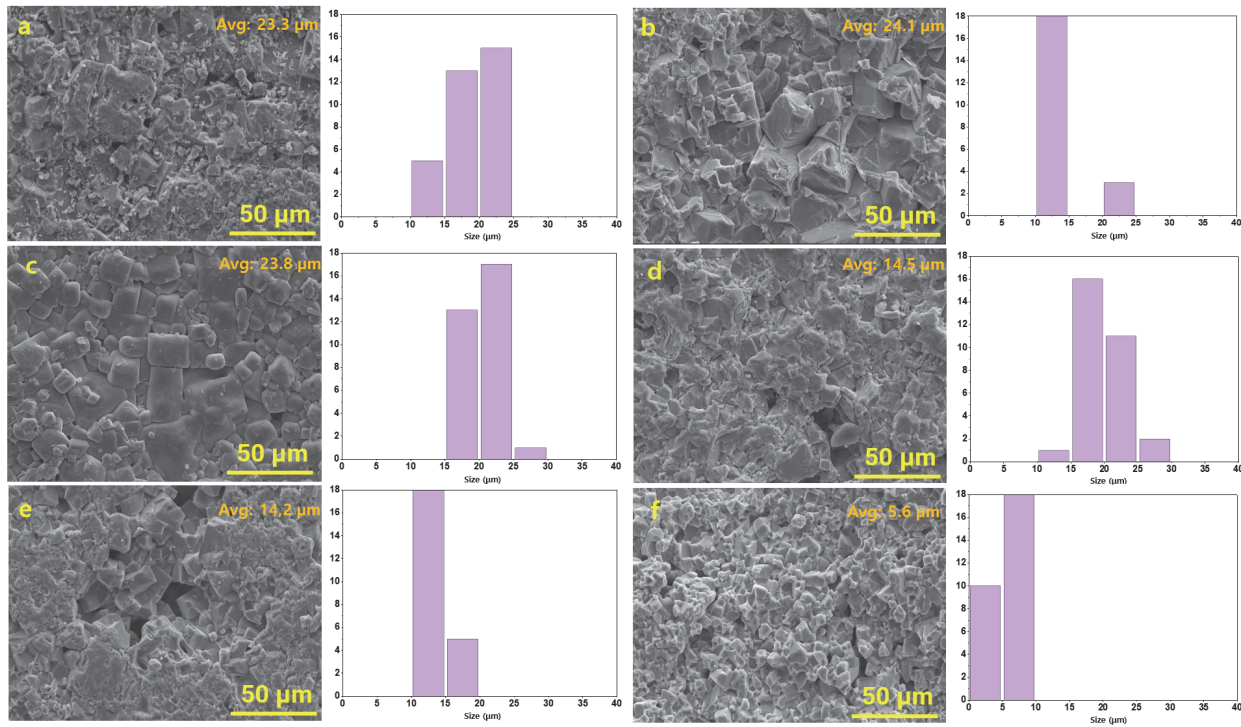
하소 후 분말에 대한 XRD 분석 [그림 1(a)] 결과, LATP에 8 wt%  $Ta_2O_5$ 를 첨가한 경우 Ta 관련 2차 상이 존재하는 것으로 나타났으며, 이는 과도한 도핑이 오히려 성능 저하를 유발할 수 있음을 보여준다. 따라서 최적 도핑 농도는 8 wt% 이하의 범위 내에서 달성될 수 있을 것으로 판단된다.

소결체의 XRD 분석 [그림 1(b)]에서는  $Ta_2O_5$  첨가에 따라 비도핑 LATP에 비해 전반적으로 2차 상이 크게 감소하는 경향이 확인되었다. 하지만,  $Ta_2O_5$  함량이 4 wt%를 초과하면  $AlPO_4$ 에 해당하는 회절 피크가 다시 나타났으며, 이는 고농도 도핑 시  $AlPO_4$ 와 같은 전기화학적으로 비활성인 상이 형성될 수 있음을 의미한다. 반면, 5 wt%  $Ta_2O_5$ 가 첨가된 시편에서는  $AlPO_4$  피크가 전혀 관찰되지 않았다.  $AlPO_4$ 는 입자 간 접촉(grain-to-grain contact)을 저해하여 리튬 이온의 연속적인 이동을 방해하고, 구조 내 유효 전도 경로를 단절시킴으로써 총 이온전도도를 크게 저하시킨다 [26]. 따라서, 5 wt% 시편에서  $AlPO_4$ 가 관찰되지 않았다는 점은 해당 조성이 가장 우수한 이온전도 특성을 나타낼 가능성이 높음을 의미한다.

그림 2(a)에는 소결된 6종의 시편이 다음과 같은 순서로 제시되어 있다: LATP, LATP + 1 wt%  $Ta_2O_5$ , LATP + 2 wt%  $Ta_2O_5$ , LATP + 4 wt%  $Ta_2O_5$ , LATP + 5 wt%  $Ta_2O_5$ , LATP + 8 wt%  $Ta_2O_5$ .  $Ta_2O_5$ 가 첨가됨에 따라 입자 형상이 보다 뚜렷해졌으며, 입자 크기의 균일성 또한 향상된 것이 관찰되었다. SEM 이미지 분석 결과, LATP [그림 2(a)], LATP + 1 wt%  $Ta_2O_5$  [그림 2(b)], LATP + 2 wt%  $Ta_2O_5$  [그림 2(c)]의 평균 입자 크기는 약 24  $\mu m$  수준으로 유사하였으나, LATP + 4 wt%  $Ta_2O_5$  [그림 2(d)] 및 LATP + 5 wt%  $Ta_2O_5$  [그림 2(e)]의 경우 평균 입자 크기가 약 14  $\mu m$ 로 크게 감소하였다. 특히, LATP + 8 wt%  $Ta_2O_5$  [그림 2(f)]에서는 평균 입자 크기가 약 5.6  $\mu m$ 까지 감소하였으며, 이는 높은  $Ta_2O_5$  도핑 농도가 입자 성장(grain growth)을 효과적으로 억제하고 미세구조가 정제되었음



**Fig. 1.** XRD patterns in (a) calcinated sample for x wt%  $Ta_2O_5$ -LATP(x=0, 1, 2, 4, 5, 8) and (b) sintered sample for x wt%  $Ta_2O_5$ -LATP(x=0, 1, 2, 4, 5, 8).



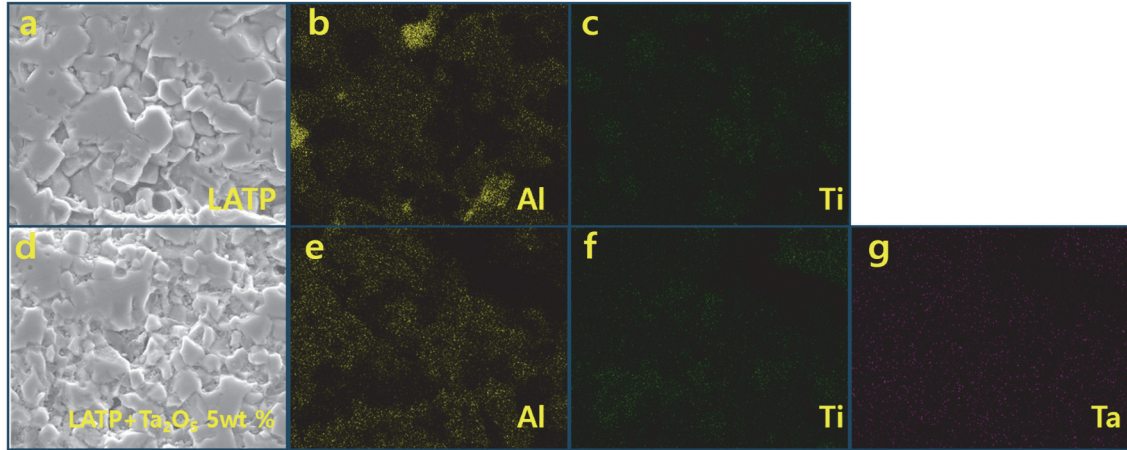
**Fig. 2.** SEM images and histogram of x wt% Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-LATP, (a) x=0, (b) x=1, (c) x=2, (d) x=4, (e) x=5, and (f) x = 8.

을 보여준다. 이와 같은 입자 크기 변화는 소결 과정에서의 다양한 인자와 밀접한 관련이 있다. 일반적으로 고온 소결은 입자 성장을 촉진시키지만, 도펀트가 입계에 존재할 경우 입자 응집 및 성장 속도에 영향을 미칠 수 있다. 특히, Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 도핑은 입계 이동(grain boundary migration)을 저해함 [27]으로써 4-5 wt% 이상의 고농도에서 입자 성장을 억제하는 역할을 하는 것으로 판단된다.

아울러, Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>의 존재는 소결 과정에서 입자의 재배열 및 치밀화(densification)를 촉진하여 구조적 안정성 및 이온 이동성을 향상시킬 수 있다. 실제로 8 wt% Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 시편 [그림 2(f)]에서는 입자 성장이 가장 강하게 억제되었으며, 과도한 입자 성장이 억제됨으로써 이온전도도 저하를 방지할 수 있는 구조적 이점이 확보되었다. 이는 Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>가 소결 중 입자 크기를 효과적으로 조절하고, 균일하고 조밀한 미세구조 형성을 유도함을 의미한다. 이러한 이유는 고체 전해질 LATP에 Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>를 도핑할 경우, Ta<sup>5+</sup> 이온이 Ti<sup>4+</sup> 자리를 치환하게 되며, 이로 인해 산화수 차이에 따른 전하 불균형이 발생하게 된다. 이러한 전하 불균형을 보충하기 위해 결정 내에서는 리튬 이온 공공(Li<sup>+</sup> vacancy)과 같은 격자 결함이 생성되며, 이는 소결 과정에서 물질 확산 경로를 제공하고 활성화를 촉진하는 역할을 한다 [28]. 결과적으로, 이러한 공공 구조는 소결 속도를 증가시키고, 입자

가 충분히 성장하기 전에 조밀한 구조로 소결이 완료되도록 유도한다. 따라서 Ta 도핑이 이루어진 시편은 비도핑 LATP에 비해 상대적으로 작은 평균 입자 크기를 나타내며, 이는 앞서 언급한 입자 성장 억제 효과와 더불어 미세 구조 정제에 기여한다.

그러나 입자 크기가 과도하게 작아질 경우 AlPO<sub>4</sub>와 같은 2차 상이 형성될 수 있으며, 이는 전해질 내 이온전도 경로를 단절시켜 전도도 저하를 야기할 수 있다 [25]. 입자 크기와 이온전도도 간의 관계에 대한 선형 연구에 따르면, 입자 크기가 커질수록 표면적 대비 부피비가 감소하고, 소결 후 기공률 증가로 인해 상대 밀도가 낮아지며, 이는 이온전도도의 감소로 이어진다 [29,30]. 반면, 입자 크기가 너무 작아지면 입계 면적이 과도하게 증가하여 상대 밀도는 높아질 수 있으나 입계 저항이 증가하게 되어 결과적으로 전도도가 감소할 수 있다 [29,30]. 추가적으로, SEM 분석 결과 LATP + 5 wt% Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 시편 [그림 2(e)]에서는 입자 크기가 평균 10 μm로 유지됨과 동시에 입자 형태가 정방형(square-like) 구조로 뚜렷하게 형성되어 있었다. 입자 간 뚜렷한 기공이나 균열이 관찰되지 않았으며, 이는 우수한 치밀화 및 구조적 안정성을 나타낸다. 이러한 구조적 특징은 전기화학적 성능 향상을 뒷받침하는 요소로 [31], Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 도핑이 LATP 내의 입자를 정제하는 데 효과적임을



**Fig. 3.** SEM and EDS mapping images of undoped LAMP (a: SEM, b: Al, c: Ti) and Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-doped LAMP (d: SEM, e: Al, f: Ti, g: Ta).

재확인시켜준다.

그림 3은 LAMP [그림 3(a)]와 5 wt% Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>가 도핑된 LAMP [그림 3(d)]에 대한 EDS (energy dispersive spectroscopy) 분석 결과를 보여준다. 분석 결과, Ta가 단순히 입자 표면에 존재하는 것이 아니라, 입자 내 각 구성 원소들이 전반적으로 균일하게 분포되어 있음이 확인되었다. 특히, Ta의 스펙트럼 분석 결과에서는 Ta가 입계 (grain boundary)에 국부적으로 집중되지 않고, 입자 전반적으로 균일하게 분산되어 있음이 확인되었다. 만약 Ta가 입계에 집중적으로 존재할 경우, 입계 저항이 증가하여 이온 전도도를 저해할 가능성이 있었지만, 본 연구에서는 Ta가 입자 내부에 고르게 분포되어 있어, 입자 구조 및 입자 성장 거동에 직접적인 영향을 미치는 것으로 판단된다. 이러한 균일한 도핑 효과는 소결 밀도 및 미세구조 균일성 향상에 중요한 역할을 하며, 최적화된 미세구조 형성을 가능하게 하였다.

EIS (electrochemical impedance spectroscopy) 분석을 통해 서로 다른 Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 농도를 갖는 LAMP 시편들의 전기화학적 특성을 평가하였다. 고체전해질의 전체 저항 (R<sub>t</sub>)을 바탕으로 이온전도도(ionic conductivity,  $\sigma$ )를 구하는 식은 다음과 같다:

$$\sigma(\Omega \cdot \text{cm})^{-1} = \frac{l}{R_t} \cdot \frac{l}{A}$$

한편, 위에서 제시한 이온전도도 계산식에서 R<sub>t</sub>는 EIS 분석을 통해 얻어진 전체 저항이며, **l**은 시편의 두께, **A**는 전극의 단면적을 의미한다. 이 식을 통해 합성된 LAMP 시편의 이온전도도를 정량적으로 정확히 산출할 수 있다.

Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>가 도입됨에 따라, 순수 LAMP 대비 R<sub>t</sub> 값이 현저

히 감소하는 경향이 관찰되었다. 이러한 전기화학적 개선은 Ta 도핑으로 인한 격자 구조 변화, 입자 크기 정렬 및 2차 상 생성 억제 효과에 기인하는 것으로 해석된다. 순수 LAMP의 이온전도도는  $2.63 \times 10^{-5}$  S/cm으로 측정되었으며, Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 함량이 증가함에 따라 전도도도 점진적으로 향상되었다 (표 1). 특히, 5 wt% Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>가 도핑된 샘플의 경우 이온전도도가  $2.95 \times 10^{-4}$  S/cm에 도달하여, 순수 LAMP 대비 약 10배 이상 증가한 값을 나타냈다. 그러나 Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 함량이 5 wt%를 초과하는 8 wt% 도핑 시편에서는 AlPO<sub>4</sub> 2차상 형성 및 과하게 정제된 입자들의 분포로 인하여 이온전도도가 다소 감소하였으며, 이 경우 전도도는  $1.21 \times 10^{-4}$  S/cm로 측정되었다.

상대 밀도 또한 이온전도도와 유사한 경향을 나타내었으며, 이는 Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 도핑이 상대 밀도와 이온전도도 모두 개선시켰다는 사실을 입증한다 (표 1). LAMP에 Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>를 첨가함으로써 기공률이 감소하고 입자 성장이 제어되어, 전반적인 밀도가 증가하였다고 볼 수 있다. 특히, 가장 높은 함량을 지닌 8 wt% Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 도핑 시편은 95.5%의 높은 상대 밀도를 달성하였으며, 이는 구조적 개선이 이루어졌음을 의미한다.

이러한 이온전도도의 상승 이유는, Ta<sup>5+</sup>의 이온 반지름 (64 pm)이 Ti<sup>4+</sup>의 이온 반지름(60 pm)에 비해 크므로, 결정 격자 내 치환 시 LAMP 구조에 격자 왜곡(lattice distortion)을 유발하며 [24], 이로 인해 Li 이온의 확산 경로가 확장된다 [32]. 이러한 구조적 변화는 Li 이온 이동에 필요한 활성화 에너지(activation energy)를 감소시키고, 결과적으로 전체 이온전도도의 향상으로 이어진다. 또한, Ta 도핑이 소결 속도를 향상시켜 과도한 입자 성장을 억제하고 입자 분포 및 형상을 균일하게 조절함으로써 (그림 2),

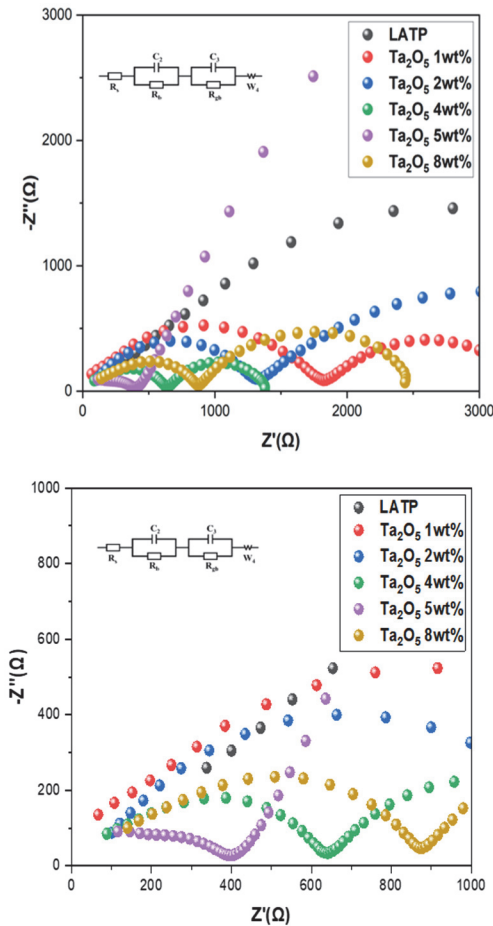


Fig. 4. EIS profiles of LAMP and x wt% Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-LAMP (x=0, 1, 2, 4, 5, 8).

Table 1. Total ionic conductivities and relative density of x wt% Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-LAMP (x=0, 1, 2, 4, 5, 8) samples.

	Relative density	Ionic conductivity
LAMP	91.4%	$2.63 \times 10^{-5}$ S/cm
LAMP + Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> 1 wt%	88.3%	$6.13 \times 10^{-5}$ S/cm
LAMP + Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> 2 wt%	93.7%	$1.20 \times 10^{-4}$ S/cm
LAMP + Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> 4 wt%	93.2%	$2.66 \times 10^{-4}$ S/cm
LAMP + Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> 5 wt%	93.9%	$2.95 \times 10^{-4}$ S/cm
LAMP + Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> 8 wt%	95.5%	$1.21 \times 10^{-4}$ S/cm

이온 이동 경로의 저항을 최소화하고 전도 경로를 최적화함을 확인할 수 있었다. 이러한 미세구조의 정제(refinement)는 LAMP 내 Li 이온의 이동성을 크게 향상시키는 데 기여한다. 한편, 8 wt% 도핑 시 오히려 이온전도도가 감소한 것은, 과도한 도핑에 의해 결정격자가 왜곡되고, 일부

Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>가 격자에 고용되지 못하고 이차상으로 석출되어 이온 전도 경로를 방해한 것으로 판단된다. 또한 과량의 정공 생성이 오히려 Li<sup>+</sup> 이온의 연속적인 이동을 저해했을 가능성도 있다. 반면, 5 wt% Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 도핑 샘플은 타 조성에 비해 현저히 높은 이온전도도를 나타내었으며, 이는 AlPO<sub>4</sub> 2차 상의 부재 [그림 1(b)]에 기인하는 것으로 해석된다. AlPO<sub>4</sub>는 LAMP 입계 저항을 증가시켜 이온 이동을 방해하는 것으로 잘 알려져 있으며 [26], 본 연구에서 5 wt% Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 도핑 시 해당 상의 생성이 억제된 것은 Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>가 LAMP의 상 안정성을 강화하고 전기화학적 성능을 최적화하는 데 효과적으로 작용함을 보여준다.

결론적으로, Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>의 도입은 LAMP의 구조 안정성, 이온전도도 및 소결 밀도를 효과적으로 향상시켰으며, 특히 5 wt% Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 도핑 조건에서 상 안정성과 전기화학적 성능 간의 균형이 가장 잘 유지되는 최적 조성으로 확인되었다. 이 조성은 결정 구조를 안정화하고, 입자 성장을 제어하며, 입계 저항을 감소시켜 LAMP의 이온전도도를 획기적으로 향상시키는 데 기여하였다. 향후 연구에서는 본 소재의 장기 사이클 안정성 및 전극과의 계면 안정성에 대한 심층적 연구가 추가적으로 수행되어야 하며, 이를 통해 상용 전고체전지 시스템에의 통합 가능성을 더욱 구체화할 수 있을 것으로 기대된다. 지속적인 기술 개발이 이루어진다면, 본 연구에서 제안한 Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 도핑 LAMP는 차세대 에너지 저장 장치 개발에 있어 핵심적인 역할을 수행할 수 있을 것이다.

ORCID

Weon Ho Shin

<https://orcid.org/0000-0003-0487-5480>

감사의 글

이 논문은 2025년도 광운대학교 우수연구자 지원 사업 및 2025년도 정부(산업통상자원부)의 재원으로 한국산업기술진흥원의 지원을 받아 수행된 연구임(RS-2025-02214408, 2025년 산업혁신인재성장지원사업). 또한, 한국연구재단 중견연구자 지원사업(RS-2022-NR069616)의 지원을 받아 수행하였음.

REFERENCES

[1] J. Šimaitis, R. Lupton, C. Vagg, I. Butnar, R. Sacchi, and S. Allen, *Commun. Earth Environ.* **6**, 476 (2025). doi: <https://doi.org/10.1038/s43247-025-02447-2>

- [2] L. Peiseler, V. Schenker, K. Schatzmann, S. Pfister, V. Wood, and T. Schmidt, *Nat. Commun.*, **15**, 10301 (2024).  
doi: <https://doi.org/10.1038/s41467-024-54634-y>
- [3] S. H. Lim, G. Y. Lee, N. H. Kim, D. E. Kim, and G. S. Kil, *J. Korean Inst. Electr. Electron. Mater. Eng.*, **34**, 327 (2021).  
doi: <https://doi.org/10.4313/JKEM.2021.34.5.327>
- [4] X. Feng, M. Ouyang, X. Liu, L. Lu, Y. Xia, and X. He, *Energy Storage Mater.*, **10**, 246 (2018).  
doi: <https://doi.org/10.1016/j.ensm.2017.05.013>
- [5] J. Hou, L. Lu, L. Wang, A. Ohma, D. Ren, X. Feng, Y. Li, Y. Li, I. Ootani, X. Han, W. Ren, X. He, Y. Nitta, and M. Ouyang, *Nat. Commun.*, **11**, 5100 (2020).  
doi: <https://doi.org/10.1038/s41467-020-18868-w>
- [6] T. M. Bandhauer, S. Garimella, and T. F. Fuller, *J. Electrochem. Soc.*, **158**, R1 (2011).  
doi: <https://doi.org/10.1149/1.3515880>
- [7] Y. Kato, S. Hori, T. Saito, K. Suzuki, M. Hirayama, A. Mitsui, M. Yonemura, H. Iba, and R. Kanno, *Nat. Energy*, **1**, 16030 (2016).  
doi: <https://doi.org/10.1038/nenergy.2016.30>
- [8] J. Janek and W. G. Zeier, *Nat. Energy*, **8**, 230 (2023).  
doi: <https://doi.org/10.1038/s41560-023-01208-9>
- [9] C. H. Chan, H. H. Wong, S. Liang, M. Sun, T. Wu, Q. Lu, L. Lu, B. Chen, and B. Huang, *Batteries Supercaps*, **7**, e202400432 (2024).  
doi: <https://doi.org/10.1002/batt.202400432>
- [10] Y. Guo, S. Wu, Y. B. He, F. Kang, L. Chen, H. Li, and Q. H. Yang, *EScience*, **2**, 138 (2022).  
doi: <https://doi.org/10.1016/j.esci.2022.02.008>
- [11] R. Zheng and C. Kim, *J. Mech. Sci. Technol.*, **37**, 4149 (2023).  
doi: <https://doi.org/10.1007/s12206-023-0731-z>
- [12] S. Randau, D. A. Weber, O. Kötz, R. Koerver, P. Braun, A. Weber, E. Ivers-Tiffée, T. Adermann, J. Kulisch, W. G. Zeier, F. H. Richter, and J. Janek, *Nat. Energy*, **5**, 259 (2020).  
doi: <https://doi.org/10.1038/s41560-020-0565-1>
- [13] S. R. Yeandel, B. J. Chapman, P. R. Slater, and P. Goddard, *J. Phys. Chem. C*, **122**, 27811 (2018).  
doi: <https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.8b07704>
- [14] X. Randrema, I. L. Mfiban, M. Soler, I. Profatlova, M. Berthault, R. Ramos, J. Lavie, E. De Vito, L. Blanc, S. Diry, S. Launois, V. Tarnopolskiy, M. Reytier, J. F. Colin, C. Barchasz, and S. Liatard, *Batteries Supercaps*, **7**, e202300380 (2024).  
doi: <https://doi.org/10.1002/batt.202300380>
- [15] H. J. Deiseroth, S. T. Kong, H. Eckert, J. Vannahme, C. Reiner, T. Zaiß, and M. Schlosser, *Angew. Chem.*, **120**, 767 (2008).  
doi: <https://doi.org/10.1002/ange.200703900>
- [16] Y. Ji, Y. H. Zhang, F. N. Shi, and L. N. Zhang, *J. Colloid Interface Sci.*, **629**, 492 (2023).  
doi: <https://doi.org/10.1016/j.jcis.2022.09.089>
- [17] M. Kotobuki and M. Koishi, *Ceram. Int.*, **39**, 4645 (2013).  
doi: <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2012.10.206>
- [18] H. K. Tian, R. Jalem, B. Gao, Y. Yamamoto, S. Muto, M. Sakakura, Y. Iriyama, and Y. Tateyama, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **12**, 54752 (2020).  
doi: <https://doi.org/10.1021/acsami.0c16463>
- [19] J. H. Yin, H. Zhu, S. J. Yu, Y. B. Dong, Q. Y. Wei, G. Q. Xu, Y. Xiong, and Y. Qian, *Adv. Eng. Mater.*, **25**, 2300566 (2023).  
doi: <https://doi.org/10.1002/adem.202300566>
- [20] A. Mashekova, Y. Baltash, M. Yegamkulov, I. Trussov, Z. Bakenov, and A. Mukanova, *RSC Adv.*, **12**, 29595 (2022).  
doi: <https://doi.org/10.1039/D2RA05782D>
- [21] A. Kızılaslan, M. Kirkbınar, T. Cetinkaya, and H. Akbulut, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **22**, 17221 (2020).  
doi: <https://doi.org/10.1039/D0CP03442H>
- [22] S. Shin, S. H. Kang, G. H. Kim, D. Kim, Y. J. Jung, D. E. Hyun, J. Y. Kim, J. Hur, J. M. Yuk, J. Park, D. W. Lee, K. H. Lee, W. H. Nam, J. Y. Cho, J. M. Oh, H. S. Kim, J. G. Ha, K. S. Moon, and W. H. Shin, *Compos. B: Eng.*, **280**, 111478 (2024).  
doi: <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2024.111478>
- [23] B. Kang, H. Park, S. Woo, M. Kang, and A. Kim, *Ceramist*, **21**, 349 (2018).  
doi: <https://doi.org/10.31613/ceramist.2018.21.4.04>
- [24] J. Kim, L. T. Duy, S. Y. Lee, M. Ko, and H. Seo, *J. Asian Ceram. Soc.*, **8**, 1135 (2020).  
doi: <https://doi.org/10.1080/21870764.2020.1824325>
- [25] L. J. Miara, S. P. Ong, Y. Mo, W. D. Richards, Y. Park, J. M. Lee, H. S. Lee, and G. Ceder, *Chem. Mater.*, **25**, 3048 (2013).  
doi: <https://doi.org/10.1021/cm401232r>
- [26] D. Campanella, S. Krachkovskiy, C. Faure, W. Zhu, Z. Feng, S. Savoie, G. Girard, H. Demers, A. Vijh, C. George, M. Armand, D. Belanger, and A. Paoletta, *ChemElectroChem*, **9**, e202200984 (2022).  
doi: <https://doi.org/10.1002/celec.202200984>
- [27] R. Yao, Z. G. Liu, Z. Y. Ding, Y. J. Jin, G. Cao, Y. H. Wang, and J. H. Ouyang, *J. Alloys Compd.*, **844**, 156023 (2020).  
doi: <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2020.156023>
- [28] P. M. Gonzalez Puente, S. Song, S. Cao, L. Z. Rannalter, Z. Pan, X. Xiang, Q. Shen, and F. Chen, *J. Adv. Ceram.*, **10**, 933 (2021).  
doi: <https://doi.org/10.1007/s40145-021-0489-7>
- [29] N. L. Vu, D. J. Heo, T. H. Dinh, C. W. Ahn, H. S. Han, and J. S. Lee, *J. Korean Inst. Electr. Electron. Mater. Eng.*, **36**, 505 (2023).  
doi: <https://doi.org/10.4313/JKEM.2023.36.5.11>
- [30] X. Li, Y. Zhou, J. Tang, S. Zhao, J. Zhang, X. Huang, and B. Tian, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **15**, 36289 (2023).  
doi: <https://doi.org/10.1021/acsami.3c06675>
- [31] S. D. Jackman and R. A. Cutler, *J. Power Sources*, **218**, 65 (2012).  
doi: <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2012.06.081>
- [32] A. Xu, R. Wang, M. Yao, J. Cao, M. Li, C. Yang, F. Liu, and J. Ma, *Nanomaterials*, **12**, 2082 (2022).  
doi: <https://doi.org/10.3390/nano12122082>