

PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW。

(84) 指定国(除另有指明, 要求每一种可提供的地区保护): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), 欧亚 (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), 欧洲 (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG)。

本国际公布:

— 包括国际检索报告(条约第21条(3))。

(57) 摘要: 一种电极、电极的制备方法和电池。所述电极包括n层依次堆叠的极片层; 其中, 靠近电池的隔膜一侧的所述极片层为第1层, 靠近所述电池的集流体一侧的所述极片层为第n层, n为大于或等于2的自然数; 第1层的所述极片层的电极材料包括第一颗粒, 第2至n层的每层所述极片层的电极材料分别至少包括第一颗粒和第二颗粒, 所述第一颗粒的平均粒径大于所述第二颗粒的平均粒径; 每层所述极片层的孔隙率沿着从第n层到第1层的方向逐渐增大。

电极、电极的制备方法和电池

相关申请的交叉引用

本申请要求于 2021 年 08 月 06 日提交的申请号为 202110903844.7、名称为“电极、电
5 极的制备方法和电池”的中国专利申请的优先权，其全部内容通过引用结合在本申请中。

技术领域

本申请涉及电池组件技术领域，更具体地，涉及一种电极、电极的制备方法和电池。

10 背景技术

锂离子动力电池是一种可以充电的新型高能电池，主要依靠锂离子在正极和负极之间移动来工作。其具有能量高、电池电压高、工作温度范围宽、贮存寿命长等优点，已广泛应用于军事和民用小型电器中。

随着能源汽车的推广，锂离子动力电池在汽车领域的应用也愈加广泛。锂离子动力电池
15 的体积能量密度对其在整车中的使用非常关键，现有技术中，通常采用提高电极的压实密度来提升电池的体积能量密度。但电极的极限压实密度通常受到材料自身的真密度影响，同时，在高压实下，电极的孔隙率会变得极低，尤其是电极的表面，孔隙容易被堵住，导致锂离子不易扩散，导致电极的动力学性能大幅度降低。

20 申请内容

本申请的一个目的是提供一种电极、电极的制备方法和电池的新技术方案。

根据本申请的第一方面，提供了一种电极，包括： n 层依次堆叠的极片层；其中，靠近
25 电池的隔膜一侧的所述极片层为第 1 层，靠近电池的集流体一侧的所述极片层为第 n 层， n 为大于或等于 2 的自然数；第 1 层的所述极片层的电极材料包括第一颗粒，第 2 至 n 层的每层所述极片层的电极材料分别至少包括第一颗粒和第二颗粒，所述第一颗粒的平均粒径大于所述第二颗粒的平均粒径；每层所述极片层的孔隙率沿着从第 n 层到第 1 层的方向逐渐增大。

根据本申请的第二方面，提供了一种第一方面所述电极的制备方法，包括以下步骤：
30 将电极材料与导电剂、粘结剂充分混合形成混合物；将所述混合物加热，使所述粘结剂呈熔融状态；将熔融状态的所述粘结剂固化，固化的所述粘结剂包裹所述电极材料得到粉末状物质；将所述粉末状物质加工形成所述极片层；按照上述方式，通过调整每层所述极片层的第一颗粒和第二颗粒的数量，制备出多层不同孔隙率的所述极片层；按照所述孔隙率

的大小，将多层所述极片层依次层叠、融合得到所述电极。

根据本申请的第三方面，提供了一种电池，包括第一方面所述的电极。

根据本公开的一个实施例，通过第一颗粒制备隔膜侧的极片层，通过不同粒径的第一颗粒和第二颗粒制备其余极片层，提高了电极的压实密度。同时，极片层的多层设置，以及将每层极片层设置为孔隙率沿着从所述集流体侧到所述隔膜侧层的方向逐渐增大，提高了锂离子的扩散效率，提高了电极的动力学性能。

通过以下参照附图对本申请的示例性实施例的详细描述，本申请的其它特征及其优点将会变得清楚。

10 附图说明

被结合在说明书中并构成说明书的一部分的附图示出了本申请的实施例，并且连同其说明一起用于解释本申请的原理。

图 1 是本申请中的一种电极及其制备流程的示意图。

图 2 是本申请中的一种电池的示意图。

15 图 3 是本申请中的电极的制备方法的流程图。

附图标记说明：

1-第一电极；11-第一颗粒；12-第二颗粒；13-第 1 层；14-第 n 层；2-第二电极；3-隔膜；4-第一集流体；5-第二集流体；6-电解液。

20

具体实施方式

现在将参照附图来详细描述本申请的各种示例性实施例。应注意到：除非另外具体说明，否则在这些实施例中阐述的部件和步骤的相对布置、数字表达式和数值不限制本申请的范围。

25 以下对至少一个示例性实施例的描述实际上仅仅是说明性的，决不作为对本申请及其应用或使用的任何限制。

对于相关领域普通技术人员已知的技术、方法和设备可能不作详细讨论，但在适当情况下，所述技术、方法和设备应当被视为说明书的一部分。

30 在这里示出和讨论的所有例子中，任何具体值应被解释为仅仅是示例性的，而不是作为限制。因此，示例性实施例的其它例子可以具有不同的值。

应注意到：相似的标号和字母在下面的附图中表示类似项，因此，一旦某一项在一个附图中被定义，则在随后的附图中不需要对其进行进一步讨论。

现有技术中，通常通过提高电极的压实密度以提高电池的体积能量密度，但高压实的电极会使得电极的孔隙率降低，尤其是电极表面的孔隙容易被堵住。电极孔隙的多少直接影响电池的充放电性能，如果孔隙率较低或者被堵，都会影响锂离子的移动，导致电极的动力学性能大幅度降低。因此，电极结构不仅需要具有高压，同时还需要具有合理的孔隙结构。其中，孔隙率是指材料中的孔隙体积与材料在自然状态下总体积的百分比。

如图 1 至图 2 所示，为了解决上述技术问题，本申请提供了一种电极，包括 n 层依次堆叠的极片层；其中，靠近电池的隔膜一侧的所述极片层为第 1 层 13，靠近电池的集流体一侧的所述极片层为第 n 层 14，n 为大于或等于 2 的自然数；第 1 层 13 的所述极片层的电极材料包括第一颗粒 11，第 2 至 n 层的每层所述极片层的电极材料分别至少包括第一颗粒 11 和第二颗粒 12，所述第一颗粒 11 的平均粒径大于所述第二颗粒 12 的平均粒径；每层所述极片层的孔隙率沿着从第 n 层 14 到第 1 层 13 的方向逐渐增大。

具体地，在本实施例中，电极为多层（n 层）极片层层叠设置的结构（n 为大于或等于 2 的自然数，即电极可以包括 2 层、3 层，甚至更多层，本申请对此不作限制），这种结构有利于对每层极片层的电极材料等特征进行区别设置。多层极片层层叠设置后，确定分别位于电极两侧的第 1 层 13 的极片层和第 n 层 14 的极片层（在将电极应用于电池中时，电极的两侧通常会设置集流体和隔膜，靠近集流体的极片层为第 n 层 14，靠近隔膜的极片层为第 1 层 13）的电极材料。电极材料包括第一颗粒 11 和第二颗粒 12，其中，第一颗粒 11 的平均粒径大于第二颗粒 12 的平均粒径。第 1 层 13 极片层的电极材料可以仅包括第一颗粒 11，其余极片层（第 2 至 n 层）的电极材料可包括第一颗粒 11（大颗粒）和第二颗粒 12（小颗粒）。大颗粒与小颗粒的搭配，使小颗粒可以填充在大颗粒之间的间隙，实现更高的高压实密度。其中，其余极片层指的是除第 1 层 13 以外的其它极片层，即如果电极总共有 2 层极片层，其余极片层即为第 2 层极片层，则第 2 层极片层的电极材料至少包括第一颗粒 11 和第二颗粒 12；如果电极有 3 层极片层，其余极片层即为第 2 层和第 3 层的极片层，则第 2 层和第 3 层的极片层分别均至少包括第一颗粒 11 和第二颗粒 12，依次类推。

另外，可以通过调整其余极片层（第 2 至 n 层）的大、小颗粒的数量，将每层极片层的孔隙率控制在沿着从第 n 层 14 到第 1 层 13 的方向逐渐增大，即第 n 层 14 的极片层具有最低的孔隙率，而隔膜层侧具有更大的孔隙和更高的孔隙率，以便于锂离子的扩散，使得电极具有更低的阻抗和更高倍率的放电保持率。并且，极片层的层数越多，孔隙的梯度分布（即孔隙率沿着从第 n 层 14 到第 1 层 13 的方向逐渐增大的变化规律）越均匀，越有利于锂离子的扩散。其中，各层极片层所选择的第一颗粒 11 的粒径可以有所不同，相应地，第 2 至 n 层选择的第二颗粒 12 的粒径也可以不同，方便构造每层极片层的不同孔隙率。锂离子的扩散受制于孔隙率较低的那一层，当电极包括 n 层极片层时，从孔隙率和压实角度

考虑,在实际生产中,可以先确定电极的第 1 层 13 的极片层和第 n 层 14 的极片层中的第一颗粒 11 (大颗粒)材料的比例,再调整中间层极片层的孔隙率使其呈现出均匀的梯度。

综上所述,本实施例中的电极具有高压实密度,提高了锂离子电池的体积能量密度。第 1 层 13 的极片层和第 n 层 14 的极片层之间的孔隙率的梯度变化规律,使得本方案中的电极同时具有较高的动力学性能。

可选地,第 x 层的极片层包括的第一颗粒 11 在该层电极材料中的个数占比为 a,则:

$$a=m(\text{第一颗粒})/m(\text{总颗粒})=[-x/(2n-2)+(2n-1)/(2n-2)]; \quad (1)$$

其中,n 为大于或等于 2 的自然数,x 为小于或等于 n 的自然数,m 为颗粒数量。

具体地,每层的极片层的孔隙率可以通过调整各层第一颗粒 11 和第二颗粒 12 的数量来实现。通过调整大、小颗粒的数量来实现每层极片层的孔隙率的梯度变化,在实际生产中容易实现,且调整结果比较准确。例如,在具有 2 层极片层的电极中,第 1 层 13 的极片层的第一颗粒 11 占比为 100%,第 2 层的极片层的第一颗粒 11 占比为 50%。再例如,在具有 4 层极片层的电极中,第 1 层的极片层的第一颗粒 11 占比为 100%,第 2 层的极片层的第一颗粒 11 占比为 83.3%,第 3 层的极片层的第一颗粒 11 占比为 66.7%,第 4 层的极片层的第一颗粒 11 占比为 50%。按照本申请总结的上述规律进行第一颗粒 11 数量的设置,可以保证第 n 层 14 的极片层的第一颗粒 11 数量总保持在至少 50%以上,以保证各个极片层的孔隙率不会过低。

可选地,第一颗粒 11 的平均粒径范围为 $0.90\sim 1.60\ \mu\text{m}$,第二颗粒 12 的平均粒径范围为 $0.25\sim 0.70\ \mu\text{m}$ 。

具体地,在本实施例中第一颗粒 11 的平均粒径范围为 $0.90\sim 1.60\ \mu\text{m}$,第二颗粒 12 的平均粒径范围为 $0.25\sim 0.70\ \mu\text{m}$ 。如果第一颗粒 11 或第二颗粒 12 的平均粒径过大,会使得颗粒的比表面积越小,固相扩散路径增长,使得材料的电化学反应动力较慢,影响电池的动力学性能。而如果第一颗粒 11 或第二颗粒 12 的平均粒径过小,会使得颗粒的比表面积越大,相应地电化学活性面积也会越大,使颗粒材料的表面发生的副反应会变多,电池的循环性能受损。其中,电化学活性面积指的是颗粒表面能够参加电化学反应的位点。优选地,第一颗粒 11 的平均粒径范围 $1.0\sim 1.2\ \mu\text{m}$,第二颗粒 12 的平均粒径范围为 $0.35\sim 0.55\ \mu\text{m}$ 。

可选地,第一颗粒 11 的半径为 R,第二颗粒 12 的半径小于或等于 $0.414R$ 。

具体地,在本实施例中,采用的电极材料均可以近似看成球形颗粒。同一粒径的颗粒,即使在密堆积的情况下,颗粒之间还是会存在孔隙,如果在孔隙中填入更小的粒子就能够进一步提高材料的压实。即在第一颗粒 11 密堆积的情况下,如果第一颗粒 11 的半径为 R,那么第一颗粒 11 的孔隙能够容纳的最大半径是 $0.414R$ 。因此,第二颗粒 12 的半径 $r\leq 0.414R$

时，可以顺利填入第一颗粒 11 之间的孔隙中。这样组合的材料具有超高压实，将这种超高压实组合的材料可以作为第 n 层 14 的极片层，然后从第 n 层 14 的极片层向第 1 层 13 的极片层可以逐渐减小第二颗粒 12（小颗粒）的填充数量，以逐渐提升每一层的孔隙率，构造利于锂离子扩散的梯度孔隙结构。这样的电极结构可以同时兼顾高压实和高粒子扩散效率。

5 可选地，第 2 至 n 层的每层极片层分别还包括第三颗粒，第三颗粒的最大半径小于或等于 $0.225R$ 。

具体地，在本实施例中，除了第 1 层 13 的极片层采用第一颗粒 11 外，其余极片层还可选用三种不同大小的颗粒材料制备。例如第 n 层 14 的极片层可采用第一颗粒 11、第二颗粒 12 和第三颗粒制备。此时，类比于上述实施例中的两种颗粒材料，第三颗粒的最大半径是 $0.225R$ 。利用三种不同大小的颗粒材料构筑的极片层具有更高的压实。在调整好第 n 层 14 的极片层的材料后，从第 n 层 14 的极片层向第 1 层 13 的极片层可以逐渐减小第二颗粒 12 和/或第三颗粒的填充数量，以逐渐提升每一层的孔隙率，构造利于锂离子扩散的梯度孔隙结构。三种颗粒材料的使用，不仅可以使电极的压实密度更大，并且孔隙率的变化梯度的调整也更加方便，有利于实现每层孔隙结构的均匀变化。

15 可选地，第 x 层的极片层采用的第一颗粒 11 的粒径与第二颗粒 12 的粒径满足以下条件：

$$1/d_{11} = [a \cdot d_{x12} + (1-a) \cdot d_{x22}] / [a \cdot d_{x13} + (1-a) \cdot d_{x23}]; \quad (2)$$

其中，x 为大于 1 且小于或等于 2 的自然数，a 为第 x 层中的第一颗粒 11 在该层电极材料中的个数占比； d_{11} 代表第 1 层 13 的极片层的第一颗粒 11 的粒径， d_{x1} 代表第 x 层的极片层的第一颗粒 11 的粒径； d_{x2} 代表第 x 层的第二颗粒 12 的粒径。

通常情况下，电极材料的颗粒变小的话，电极的曲折度 σ 会变大，不利于粒子扩散。在本实施例中，在配比第一颗粒 11 和第二颗粒 12 时，可以通过调整每一层的第一颗粒 11 和第二颗粒 12 的粒径大小来使得每层极片层的曲折度 σ 相近。即，第 1 层 13 的极片层的第一颗粒 11 的粒径可以与其余第 2 至 n 层的极片层的第一颗粒 11 的粒径不同。每层极片层的第一颗粒 11 和第二颗粒 12 的平均粒径满足公式 (2) 时，可以保证每层极片层的曲折度 σ 相近，从而让电极性能更均匀，有利于锂离子的扩散，进一步提高了离子扩散效率。其中，曲折度 σ 用来描述电极孔道结构的参数，曲折度越大，内部孔道越曲折，离子从表面扩散到集流体走过的路径越长。

30 可选地，极片层的层数范围为 $2 \sim 10$ 层，除第 1 层 13 外的其余每层极片层的电极材料分别包括的第二颗粒 12 的个数沿着从靠近集流体一侧到靠近隔膜一侧的方向逐渐减少。

具体地，在本实施例中，极片层的数量可以选择 2-10 层，以构筑均匀的孔隙结构。如果极片层的数量过多，相邻两层之间的孔隙率的变化很小，过小孔隙率的梯度变化对提升

锂离子扩散方面的效果并没有特别明显，但对于对生产效率的影响却很大。因此，合适的层数选择可以兼顾孔隙率的梯度变化和生产效率。另外，通过调整第二颗粒 12 在每层所占的比例，可以实现孔隙率的梯度调整。

5 可选地，电极材料包括正极材料，正极材料为磷酸铁锂、锂镍钴锰氧和锰酸锂中的至少一种。

具体地，本实施例提供的电极可以采用正极材料制造，作为电池的正极，也可以采用负极材料制造，作为电池的负极。而正极材料可以选择磷酸铁锂、锂镍钴锰氧和锰酸锂中的至少一种；负极材料为人造石墨、天然石墨、钛酸锂、软碳和硬碳中的至少一种。

以下列举几种实施例和对比例，对上述第一方面提供的电极的优势进行进一步说明。

10 实施例 1:

采用双层电极方案，电极材料选择磷酸铁锂材料。第 2 层的极片层采用第一颗粒 11（平均粒径 $D_{50}=1.38\ \mu\text{m}$ ）和第二颗粒 12（平均粒径 $D_{50}=0.57\ \mu\text{m}$ ）以 1:1 混合，质量比为 93:7；第 1 层 13 的极片层采用第一颗粒 11（平均粒径 $D_{50}=1.26\ \mu\text{m}$ ）。

实施例 2:

15 采用三层电极方案，电极材料选择磷酸铁锂材料。第 3 层的极片层采用第一颗粒 11（平均粒径 $D_{50}=1.38\ \mu\text{m}$ ）和第二颗粒 12（平均粒径 $D_{50}=0.57\ \mu\text{m}$ ）以 1:1 混合，质量比为 93:7；中间第 2 层的极片层根据上述提到的设计规则，第一颗粒 11 的平均粒径为 $1.30\ \mu\text{m}$ ，第二颗粒 12 的平均粒径为 $0.53\ \mu\text{m}$ ，质量比 97:3；第 1 层 13 的极片层采用第一颗粒 11（平均粒径 $D_{50}=1.26\ \mu\text{m}$ ）。

20 实施例 3:

采用三层电极方案，电极材料选择磷酸铁锂材料。第 3 层的极片层采用第一颗粒 11（平均粒径 $D_{50}=1.19\ \mu\text{m}$ ）和第二颗粒 12（平均粒径 $D_{50}=0.493\ \mu\text{m}$ ）以 1:1 混合，质量比为 93:7；中间第 2 层的极片层根据上述提到的设计规则，第一颗粒 11 的平均粒径为 $1.12\ \mu\text{m}$ ，第二颗粒 12 的平均粒径为 $0.466\ \mu\text{m}$ ，质量比 97:3；第 1 层 13 的极片层采用第一颗粒 11（平均粒径 $D_{50}=1.09\ \mu\text{m}$ ）。

对比例 1:

采用双层电极方案，电极材料选择磷酸铁锂材料。第 2 层的极片层采用第一颗粒（平均粒径 $D_{50}=1.26\ \mu\text{m}$ ），第 1 层的极片层采用第一颗粒（平均粒径 $D_{50}=1.38\ \mu\text{m}$ ）和第二颗粒（平均粒径 $D_{50}=0.57\ \mu\text{m}$ ）以 1:1 混合，质量比为 93:7；

30 对比例 2:

采用单层电极方案，电极材料选择磷酸铁锂材料。采用第一颗粒（平均粒径 $D_{50}=1.38\ \mu\text{m}$ ）和第二颗粒（平均粒径 $D_{50}=0.57\ \mu\text{m}$ ）1:1 混合，质量比为 96:4。

对比例 3:

采用单层电极方案，电极材料采用平均粒径为 $D_{50}=1.38 \mu\text{m}$ 的磷酸铁锂材料。
 通过上述实施例和对比例得出以下数据表。

5

表 1

实施例	相同辊压压力下压实密度 (g/cm^3)
实施例 1	2.702.65
实施例 2	2.722.67
实施例 3	2.682.63
对比例 1	2.682.63
对比例 2	2.722.67
对比例 3	2.582.53

10

表 1 显示了 1MPa 辊压压力下，宽度为 5cm 的电极对应的压实密度，可以看出，尽管加
 入了小颗粒（第二颗粒 12），多层涂布的设计可以使得极片的压实仍然维持在比较高的水
 平。

15

表 2

实施例	0.33C 放电混料克容量 (mAh/g)
实施例 1	137.5
实施例 2	138.0
实施例 3	138.2
对比例 1	135.8
对比例 2	137.2
对比例 3	136.8

表 2 显示了多层涂布按照梯度孔隙率设计得到的电极，多层涂布梯度孔隙设计得到的
 电极，在相同设计参数下具有更高的容量发挥。

20

表 3

实施例	DCIR (mΩ)
实施例 1	51.8
实施例 2	50.8
实施例 3	48.2
对比例 1	56.9
对比例 2	54.2
对比例 3	53.6

50%SOC 表 3 显示了在 50%SOC 直流内阻的条件下，本申请中的电极具有更低的阻抗，有利于锂离子的扩散。

5

表 4

实施例	0.2C/2C 放电比率
实施例 1	0.940
实施例 2	0.959
实施例 3	0.960
对比例 1	0.875
对比例 2	0.898
对比例 3	0.918

10

表 4 显示了常温 0.2/2C 放电容量比率条件下，本申请的电极具有更高倍率的放电保持率，有利于锂离子的扩散。

如图 3 所示，根据本申请的第二方面，提供了一种第一方面所述电极的制备方法，包括以下步骤：

将电极材料与导电剂、粘结剂充分混合形成混合物；

将所述混合物加热，使所述粘结剂呈熔融状态；

20 将熔融状态的所述粘结剂固化，固化的所述粘结剂包裹所述电极材料得到粉末状物质；

将所述粉末状物质加工形成所述极片层；

按照上述方式，通过调整每层所述极片层的第一颗粒 11 和第二颗粒 12 的数量，制

备出多层不同孔隙率的所述极片层；

按照所述孔隙率的大小，将多层所述极片层依次层叠、融合得到所述电极。

具体地，以制备电池的正极为例，先按照第一方面提供的方案，选取合适粒径的正极材料，并将正极材料粉碎成颗粒，与导电剂、粘结剂充分混合形成混合物。其中，正极材料可以选择磷酸铁锂、锂镍钴锰氧、锰酸锂等；导电剂包括碳纳米管，石墨烯，炭黑，碳纤维等。将混合物经过加热使其中的粘合剂呈熔融状态后，继续将其固化，使粘结剂充分包裹颗粒材料形成粉末状物质。将粉末状物质加工，形成特定尺寸和厚度的基础极片，这种基础极片就是最终用于加工电极的极片层。按照孔隙率的大小，将制备好的多层极片层层叠、融合，最终得到具有高压实和均匀孔隙率变化的电极。

其中，制备第 1 层 13 极片层时，电极材料只需加入第一颗粒 11 即可，其余各层可以根据第一方面的技术方案，根据实际需求加入第一颗粒 11、第二颗粒 12 甚至于第三颗粒等。每层极片层的第一颗粒 11 和第二颗粒 12 的数量比可以公式 (1) 确定，每层极片层的第一颗粒 11 和第二颗粒 12 的粒径可以由公式 (2) 确定。采用本申请的制备方法制备的电极，具有超高的压实密度，使得电池的体积能量密度得到提高。而电极从第 1 层 13 向第 n 层 14 的极片层的孔隙率具有一定的梯度变化规律，可以同时保证电极的动力学性能。整个制备过程简单，制备效率高。

可选地，将熔融状态的所述粘结剂固化包括：通过静电纺丝工艺将所述粘结剂固化变成纤维状。

具体地，在讲熔融状态的粘结剂固化时，可以选择静电纺丝工艺。静电纺丝就是高分子流体静电雾化的特殊形式，此时雾化分裂出的物质不是微小液滴，而是聚合物微小射流，可以运行相当长的距离，最终固化成纤维。这种方式可以生产出纳米级直径的聚合物细丝，使得粘合剂和电极材料的颗粒之间粘合的更加牢固和均匀。

可选地，将多层所述极片层依次层叠、融合的工艺包括：热压工艺。

具体地，热压工艺一方面可以时颗粒材料实现高压实，另一方面使各层的融合更完全，使电极的整体性更强。

根据本申请的第三方面，提供了一种电池，包括第一方面所述的电极。

可选地，所述电池包括：依次设置的第一集流体、第一电极 1、隔膜、第二电极 2 和第二集流体，所述第一电极 1 和所述第二电极 2 分别与所述隔膜之间设置有电解液。

如图 2 所示，本实施例提供的电池包括依次设置的第一集流体 4、第一电极 1、隔膜 3、第二电极 2 和第二集流体 5，第一电极 1 和第二电极 2 分别与隔膜 4 之间设置有

5 电解液 6。其中，第一电极 1 为负极，第二电极 2 为正极，均采用第一方面所述的电极结构。在装配时第一电极 1 和第二电极 2 的第 1 层 13 的极片层均靠近隔膜 3 设置，而第 n 层 14 的极片层分别靠近第一集流体 4 和第二集流体 5。第一集流体 4 可以采用铜箔制造，第二集流体 5 可以采用铝箔制造。本实施例中的电池具有更高的体积能量密度和动力学性能。

上文实施例中重点描述的是各个实施例之间的不同，各个实施例之间不同的优化特征只要不矛盾，均可以组合形成更优的实施例，考虑到行文简洁，在此则不再赘述。

10 虽然已经通过例子对本申请的一些特定实施例进行了详细说明，但是本领域的技术人员应该理解，以上例子仅是为了进行说明，而不是为了限制本申请的范围。本领域的技术人员应该理解，可在不脱离本申请的范围和精神的情况下，对以上实施例进行修改。本申请的范围由所附权利要求来限定。

权利要求书

1. 一种电极，应用于电池，其特征在于，包括：

n 层依次堆叠的极片片层；

5 其中，靠近电池的隔膜一侧的所述极片片层为第 1 层，靠近电池的集流体一侧的所述极片片层为第 n 层，n 为大于或等于 2 的自然数；

第 1 层的所述极片片层的电极材料包括第一颗粒，第 2 至 n 层的每层所述极片片层的电极材料分别至少包括第一颗粒和第二颗粒，所述第一颗粒的平均粒径大于所述第二颗粒的平均粒径；

10 每层所述极片片层的孔隙率沿着从第 n 层到第 1 层的方向逐渐增大。

2. 根据权利要求 1 所述的电极，其特征在于，第 x 层的所述极片片层包括的所述第一颗粒在该层电极材料中的个数占比为： $[-x/(2n-2)+(2n-1)/(2n-2)]$ ；其中，x 为小于或等于 n 的自然数。

3. 根据权利要求 1 所述的电极，其特征在于，所述第一颗粒的平均粒径范围为
15 0.90~1.60 μm ，所述第二颗粒的平均粒径范围为 0.25~0.70 μm 。

4. 根据权利要求 3 所述的电极，其特征在于，所述第一颗粒的平均粒径范围
1.0~1.2 μm ，所述第二颗粒的平均粒径范围为 0.35~0.55 μm 。

5. 根据权利要求 1-4 中任意一项所述的电极，其特征在于，所述第一颗粒的半径
为 R，所述第二颗粒的半径小于或等于 0.414R。

20 6. 根据权利要求 5 所述的电极，其特征在于，第 2 至 n 层的每层所述极片片层分别还包括第三颗粒，所述第三颗粒的半径小于或等于 0.225R。

7. 根据权利要求 1-6 中任意一项所述的电极，其特征在于，第 x 层的所述极片片层采用的所述第一颗粒的粒径与所述第二颗粒的粒径满足以下条件：

$$1/d_{11} = [a*d_{x1}^2 + (1-a)d_{x2}^2] / [a*d_{x1}^3 + (1-a)d_{x2}^3];$$

25 其中，x 大于 1 且小于或等于 n，a 为第 x 层中的所述第一颗粒在该层电极材料中的个数占比； d_{11} 代表第 1 层的所述极片片层的所述第一颗粒的粒径， d_{x1} 代表第 x 层的所述极片片层的所述第一颗粒的粒径； d_{x2} 代表第 x 层的所述第二颗粒的粒径。

8. 根据权利要求 1-7 中任意一项所述的电极，其特征在于，所述极片片层的层数范围
30 为 2~10 层，除第 1 层外的其余每层所述极片片层的电极材料分别包括的所述第二颗粒的个数沿着从靠近集流体一侧到靠近隔膜一侧的方向逐渐减少。

9. 根据权利要求 1-8 中任意一项所述的电极，其特征在于，所述电极材料包括正极材料，所述正极材料为磷酸铁锂、锂镍钴锰氧和锰酸锂中的至少一种。

10. 根据权利要求 1-9 中任意一项所述的电极，其特征在于，所述电极材料包括负极材料，所述负极材料为人造石墨、天然石墨、钛酸锂、软碳和硬碳中的至少一种。

5 11. 一种电极的制备方法，应用于权利要求 1-10 任意一项所述的电极，其特征在于，包括以下步骤：

将电极材料与导电剂、粘结剂充分混合形成混合物；

将所述混合物加热，使所述粘结剂呈熔融状态；

将熔融状态的所述粘结剂固化，固化的所述粘结剂包裹所述电极材料得到粉末状物

10 质；

将所述粉末状物质加工形成所述极片层；

按照上述方式，通过调整每层所述极片层的第一颗粒和第二颗粒的数量，制备出多层不同孔隙率的所述极片层；

按照所述孔隙率的大小，将多层所述极片层依次层叠、融合得到所述电极。

15 12. 根据权利要求 11 所述的电极的制备方法，其特征在于，将熔融状态的所述粘结剂固化包括：通过静电纺丝工艺将所述粘结剂固化变成纤维状。

13. 根据权利要求 11 或 12 所述的电极的制备方法，其特征在于，将多层所述极片层依次层叠、融合的工艺包括：热压工艺。

14. 一种电池，其特征在于，包括权利要求 1-10 任意一项所述的电极。

20 15. 根据权利要求 14 所述的电池，其特征在于，所述电池包括：依次设置的第一集流体、第一电极、隔膜、第二电极和第二集流体，所述第一电极和所述第二电极分别与所述隔膜之间设置有电解液，所述第一电极和/或第二电极为权利要求 1-10 任意一项所述的电极。

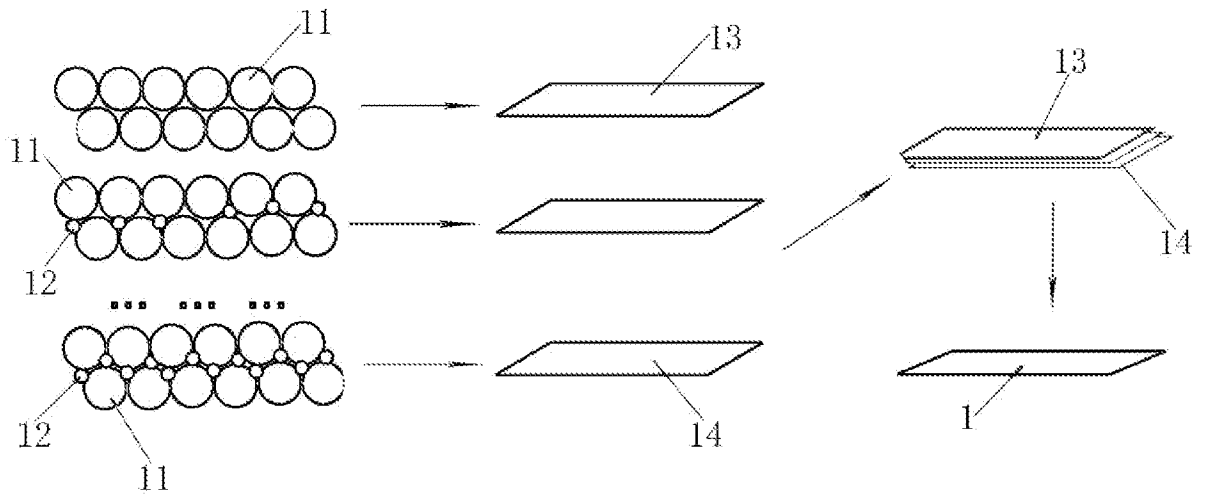


图 1

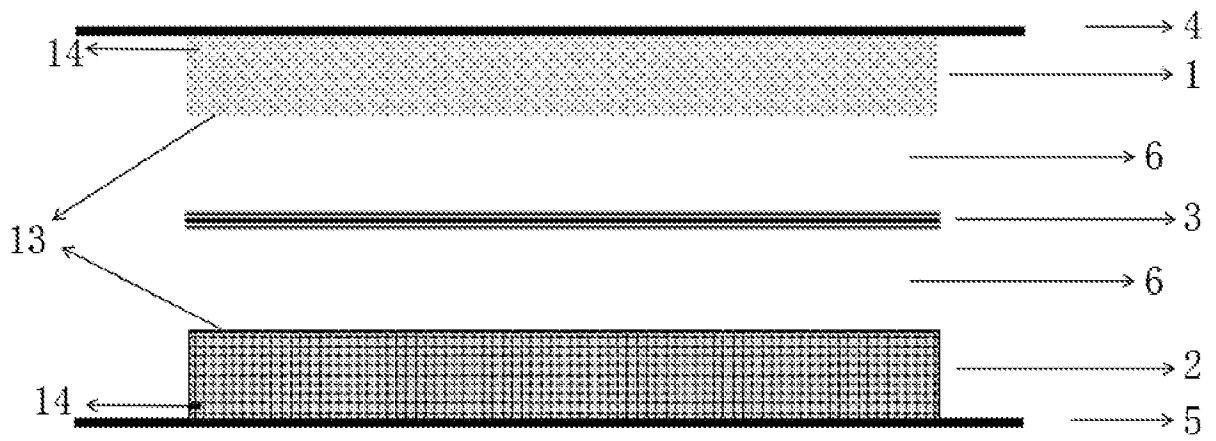


图 2

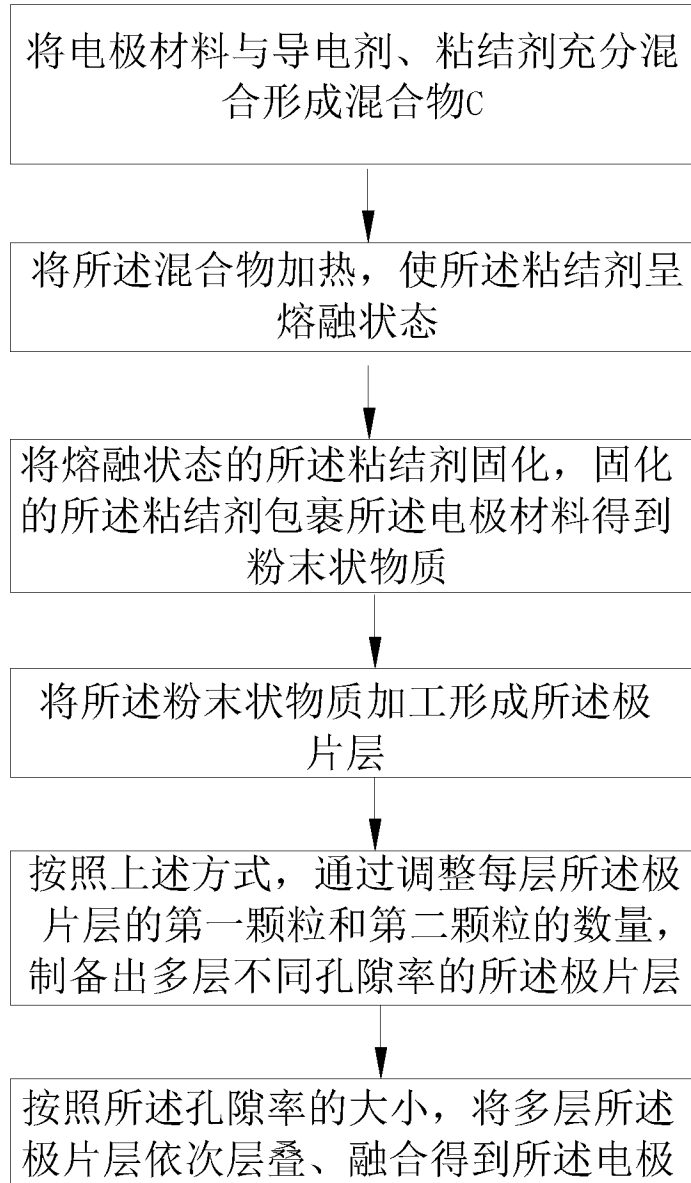


图 3

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/CN2022/110517

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
H01M 4/13(2010.01)i; H01M 4/139(2010.01)i; H01M 10/0525(2010.01)i		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)		
H01M		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
CNTXT; CNKI; ENTXT; ENTXTC; DWPI: 电极, 极片, 层, 多层, 第二, 第2, 粒径, 孔隙率, electrode, pole, piece, layer, multi, second, particle, size, porosity		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 2002028380 A1 (NISSAN MOTOR CO., LTD.) 07 March 2002 (2002-03-07) description, paragraphs 8-68, and figures 3-11	1-10, 14, 15
Y	US 2002028380 A1 (NISSAN MOTOR CO., LTD.) 07 March 2002 (2002-03-07) description, paragraphs 8-68, and figures 3-11	11-13
X	US 2014287316 A1 (LG CHEMICAL LTD.) 25 September 2014 (2014-09-25) description, paragraphs 11-60, and figure 2	1-10, 14, 15
Y	US 2014287316 A1 (LG CHEMICAL LTD.) 25 September 2014 (2014-09-25) description, paragraphs 11-60, and figure 2	11-13
Y	CN 103208610 A (HUTCHINSON) 17 July 2013 (2013-07-17) description, paragraphs 13-34	11-13
A	US 2015280221 A1 (NEXEON LTD.) 01 October 2015 (2015-10-01) entire document	1-15
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search		Date of mailing of the international search report
13 October 2022		21 October 2022
Name and mailing address of the ISA/CN		Authorized officer
China National Intellectual Property Administration (ISA/CN) No. 6, Xitucheng Road, Jimenqiao, Haidian District, Beijing 100088, China		
Facsimile No. (86-10)62019451		Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/CN2022/110517

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)			Publication date (day/month/year)
US	2002028380	A1	07 March 2002	EP	1184918	A2	06 March 2002
				JP	2002151055	A	24 May 2002
				US	7138208	B2	21 November 2006
				DE	60140163	E	26 November 2009

US	2014287316	A1	25 September 2014	WO	2014116029	A1	31 July 2014
				EP	2797142	A1	29 October 2014
				US	2017125788	A1	04 May 2017
				KR	20140095980	A	04 August 2014
				CN	104126242	A	29 October 2014
				JP	2015511389	A	26 April 2015
				CN	106935793	A	07 July 2017

CN	103208610	A	17 July 2013	KR	20130084638	A	25 July 2013
				MX	2013000698	A	09 January 2014
				CA	2802199	A1	17 July 2013
				EP	2618409	A1	24 July 2013
				US	2017025673	A1	26 January 2017
				MX	374491	B	02 September 2020
				FR	2985857	A1	19 July 2013
				BR	102013001162	A2	12 July 2016
				JP	2013152932	A	08 August 2013
				US	2013183577	A1	18 July 2013
				RU	2013101584	A	20 July 2014
				ES	2610217	T3	26 April 2017
					ZA201300452	A	25 September 2013
				IN	333405	B	06 March 2020

US	2015280221	A1	01 October 2015	JP	2015537347	A	24 December 2015
				WO	2014068318	A1	08 May 2014
				KR	20150086288	A	27 July 2015
				GB	201219729	D0	12 December 2012
				EP	2915204	A1	09 September 2015
				US	10008716	B2	26 June 2018

国际检索报告

国际申请号

PCT/CN2022/110517

<p>A. 主题的分类</p> <p>H01M 4/13(2010.01)i; H01M 4/139(2010.01)i; H01M 10/0525(2010.01)i</p> <p>按照国际专利分类(IPC)或者同时按照国家分类和IPC两种分类</p>																							
<p>B. 检索领域</p> <p>检索的最低限度文献(标明分类系统和分类号)</p> <p>H01M</p> <p>包含在检索领域中的除最低限度文献以外的检索文献</p> <p>在国际检索时查阅的电子数据库(数据库的名称, 和使用的检索词(如使用))</p> <p>CNXTX;CNKI;ENTXT;ENTXTC;DWPI:电极, 极片, 层, 多层, 第二, 第2, 粒径, 孔隙率, electrode, pole, piece, layer, multi, second, particle, size, porosity</p>																							
<p>C. 相关文件</p> <table border="1"> <thead> <tr> <th>类型*</th> <th>引用文件, 必要时, 指明相关段落</th> <th>相关的权利要求</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>X</td> <td>US 2002028380 A1 (NISSAN MOTOR) 2002年3月7日 (2002 - 03 - 07) 说明书第8-68段, 图3-11</td> <td>1-10、14、15</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>US 2002028380 A1 (NISSAN MOTOR) 2002年3月7日 (2002 - 03 - 07) 说明书第8-68段, 图3-11</td> <td>11-13</td> </tr> <tr> <td>X</td> <td>US 2014287316 A1 (LG CHEMICAL LTD) 2014年9月25日 (2014 - 09 - 25) 说明书第11-60段, 图2</td> <td>1-10、14、15</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>US 2014287316 A1 (LG CHEMICAL LTD) 2014年9月25日 (2014 - 09 - 25) 说明书第11-60段, 图2</td> <td>11-13</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>CN 103208610 A (哈金森公司) 2013年7月17日 (2013 - 07 - 17) 说明书第13-34段</td> <td>11-13</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>US 2015280221 A1 (NEXEON LTD) 2015年10月1日 (2015 - 10 - 01) 全文</td> <td>1-15</td> </tr> </tbody> </table>			类型*	引用文件, 必要时, 指明相关段落	相关的权利要求	X	US 2002028380 A1 (NISSAN MOTOR) 2002年3月7日 (2002 - 03 - 07) 说明书第8-68段, 图3-11	1-10、14、15	Y	US 2002028380 A1 (NISSAN MOTOR) 2002年3月7日 (2002 - 03 - 07) 说明书第8-68段, 图3-11	11-13	X	US 2014287316 A1 (LG CHEMICAL LTD) 2014年9月25日 (2014 - 09 - 25) 说明书第11-60段, 图2	1-10、14、15	Y	US 2014287316 A1 (LG CHEMICAL LTD) 2014年9月25日 (2014 - 09 - 25) 说明书第11-60段, 图2	11-13	Y	CN 103208610 A (哈金森公司) 2013年7月17日 (2013 - 07 - 17) 说明书第13-34段	11-13	A	US 2015280221 A1 (NEXEON LTD) 2015年10月1日 (2015 - 10 - 01) 全文	1-15
类型*	引用文件, 必要时, 指明相关段落	相关的权利要求																					
X	US 2002028380 A1 (NISSAN MOTOR) 2002年3月7日 (2002 - 03 - 07) 说明书第8-68段, 图3-11	1-10、14、15																					
Y	US 2002028380 A1 (NISSAN MOTOR) 2002年3月7日 (2002 - 03 - 07) 说明书第8-68段, 图3-11	11-13																					
X	US 2014287316 A1 (LG CHEMICAL LTD) 2014年9月25日 (2014 - 09 - 25) 说明书第11-60段, 图2	1-10、14、15																					
Y	US 2014287316 A1 (LG CHEMICAL LTD) 2014年9月25日 (2014 - 09 - 25) 说明书第11-60段, 图2	11-13																					
Y	CN 103208610 A (哈金森公司) 2013年7月17日 (2013 - 07 - 17) 说明书第13-34段	11-13																					
A	US 2015280221 A1 (NEXEON LTD) 2015年10月1日 (2015 - 10 - 01) 全文	1-15																					
<p><input type="checkbox"/> 其余文件在C栏的续页中列出。</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> 见同族专利附件。</p>																							
<p>* 引用文件的具体类型:</p> <p>“A” 认为不特别相关的表示了现有技术一般状态的文件</p> <p>“E” 在国际申请日的当天或之后公布的在先申请或专利</p> <p>“L” 可能对优先权要求构成怀疑的文件, 或为确定另一篇引用文件的公布日而引用的或者因其他特殊理由而引用的文件(如具体说明的)</p> <p>“O” 涉及口头公开、使用、展览或其他方式公开的文件</p> <p>“P” 公布日先于国际申请日但迟于所要求的优先权日的文件</p> <p>“T” 在申请日或优先权日之后公布, 与申请不相抵触, 但为了理解发明之理论或原理的在后文件</p> <p>“X” 特别相关的文件, 单独考虑该文件, 认定要求保护的发明不是新颖的或不具有创造性</p> <p>“Y” 特别相关的文件, 当该文件与另一篇或者多篇该类文件结合并且这种结合对于本领域技术人员为显而易见时, 要求保护的发明不具有创造性</p> <p>“&” 同族专利的文件</p>																							
<p>国际检索实际完成的日期</p> <p>2022年10月13日</p>		<p>国际检索报告邮寄日期</p> <p>2022年10月21日</p>																					
<p>ISA/CN的名称和邮寄地址</p> <p>中国国家知识产权局(ISA/CN)</p> <p>中国北京市海淀区蓟门桥西土城路6号 100088</p> <p>传真号 (86-10)62019451</p>		<p>授权官员</p> <p>尹朝丽</p> <p>电话号码 62411670</p>																					

国际检索报告
关于同族专利的信息

国际申请号

PCT/CN2022/110517

检索报告引用的专利文件			公布日 (年/月/日)	同族专利			公布日 (年/月/日)
US	2002028380	A1	2002年3月7日	EP	1184918	A2	2002年3月6日
				JP	2002151055	A	2002年5月24日
				US	7138208	B2	2006年11月21日
				DE	60140163	E	2009年11月26日
US	2014287316	A1	2014年9月25日	WO	2014116029	A1	2014年7月31日
				EP	2797142	A1	2014年10月29日
				US	2017125788	A1	2017年5月4日
				KR	20140095980	A	2014年8月4日
				CN	104126242	A	2014年10月29日
				JP	2015511389	A	2015年4月26日
				CN	106935793	A	2017年7月7日
CN	103208610	A	2013年7月17日	KR	20130084638	A	2013年7月25日
				MX	2013000698	A	2014年1月9日
				CA	2802199	A1	2013年7月17日
				EP	2618409	A1	2013年7月24日
				US	2017025673	A1	2017年1月26日
				MX	374491	B	2020年9月2日
				FR	2985857	A1	2013年7月19日
				BR	102013001162	A2	2016年7月12日
				JP	2013152932	A	2013年8月8日
				US	2013183577	A1	2013年7月18日
				RU	2013101584	A	2014年7月20日
				ES	2610217	T3	2017年4月26日
					ZA201300452	A	2013年9月25日
	IN	333405	B	2020年3月6日			
US	2015280221	A1	2015年10月1日	JP	2015537347	A	2015年12月24日
				WO	2014068318	A1	2014年5月8日
				KR	20150086288	A	2015年7月27日
				GB	201219729	D0	2012年12月12日
				EP	2915204	A1	2015年9月9日
				US	10008716	B2	2018年6月26日