

双光子激发 ZnSe 自由载流子超快动力学研究

杨哲 张祥 肖思 何军 顾兵

Ultrafast dynamics of free carriers induced by two-photon excitation in bulk ZnSe crystal

Yang Zhe Zhang Xiang Xiao Si He Jun Gu Bing

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 64, 177901 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.177901

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.177901>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I17>

---

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

全啁啾镜色散补偿的亚 8 fs 钛宝石激光器

All chirped mirrors long-term stable sub-8 fs Ti:sapphire oscillator

物理学报.2015, 64(14): 144204 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.144204>

基于单个 BBO 晶体载波包络相位稳定的高效率光参量放大器

High efficient CEP-stabilized infrared optical parametric amplifier made from a BBO single crystal

物理学报.2014, 63(21): 214203 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.214203>

基于多光子脉冲内干涉相位扫描法对飞秒激光脉冲进行相位测量和补偿的研究

Spectral phase measurement and compensation of femtosecond laser pulse based on multi-photon intra-pulse interference phase scan

物理学报.2014, 63(16): 164207 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.164207>

环形定子的激光致表面波机理及可视化探测研究

Theoretical and visualization study of laser-induced surface acoustic wave on annular stator

物理学报.2013, 62(22): 224209 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.224209>

宽带啁啾镜对的设计和制备

Design and fabrication of broadband chirped mirror pair

物理学报.2013, 62(20): 204207 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.204207>

## 双光子激发 ZnSe 自由载流子超快动力学研究\*

杨哲<sup>1)</sup> 张祥<sup>1)</sup> 肖思<sup>1)</sup> 何军<sup>1)†</sup> 顾兵<sup>2)‡</sup>

1) (中南大学物理与电子学院先进材料超微结构与超快过程研究所, 中南大学超微结构与超快过程湖南省重点实验室, 长沙 410083)

2) (东南大学电子科学与工程学院先进光子学中心, 南京 210096)

(2015年3月14日收到; 2015年4月26日收到修改稿)

采用 Z 扫描和抽运-探测实验技术, 在波长为 532 nm、脉冲宽度为 41 fs 的条件下测得 ZnSe 晶体的双光子吸收系数, 并获得了不同激发光强下的自由载流子吸收截面、电子-空穴带间复合时间和电子-声子耦合时间. 研究发现, 随着激发光强的增大, 自由载流子吸收截面减小, 复合时间变短. 当激发光强增大导致载流子浓度大于  $10^{18} \text{ cm}^{-3}$  时, 抽运-探测信号出现明显改变, 原因归结为强光场激发导致样品在短时间内带隙变窄和电子-空穴等离子体的形成.

**关键词:** 双光子吸收, 自由载流子吸收, ZnSe 晶体

**PACS:** 79.20.Ws, 42.65.Re, 78.40.Fy

**DOI:** 10.7498/aps.64.177901

## 1 引言

半导体材料的非线性光学性质在光限幅、全光调控、信号调制等领域有着丰富的应用价值, 近年来得到了广泛的研究<sup>[1-11]</sup>. ZnSe 晶体是典型的宽禁带 II-VI 族直接带隙半导体, 室温下的禁带宽度为 2.7 eV<sup>[12-24]</sup>. 随着四波混频<sup>[12]</sup>, Z 扫描<sup>[22-25]</sup>、抽运-探测等<sup>[7,26]</sup> 实验表征技术的出现和成熟, ZnSe 的导带和价带电子的特性逐渐为人们所了解. Sheik-Bahae 等<sup>[3]</sup> 利用 Z 扫描实验技术, 在波长 532 nm、脉冲宽度 27 ps 的激发条件下, 测得 ZnSe 的双光子吸收系数和非线性折射率分别为  $5.8 \text{ cm/GW}$  和  $6.8 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{GW}$ , 展现出非常好的非线性光学特性; 关于 ZnSe 导带电子的性质, Wang 等<sup>[4]</sup> 利用时间分辨 Z 扫描实验技术, 在波长 1064 nm、脉冲宽度 43 ps 以及波长 532 nm、脉冲宽度 31 ps 的激发条件下, 分别测量了非简并双

光子吸收 (2PA)、价带电子折射、导带电子的吸收和折射. Ye 等<sup>[14]</sup> 于 2012 年在脉冲宽度 130 fs、800 nm 的激发条件下采用 Z 扫描和抽运-探测实验技术测得了导带上和导带底电子的吸收截面分别为  $1.2 \times 10^{-22} \text{ m}^2$  和  $7 \times 10^{-20} \text{ m}^2$ . 随着研究的深入, 一些半导体材料的纳米结构也得到了广泛的研究, 如 2012 年, Yao 等<sup>[15]</sup> 利用飞秒激光荧光上转换光谱技术详细研究了 CdTe 量子点的电子-空穴弛豫动力学过程. 当今超短脉冲激光技术的快速发展, 为深入研究 ZnSe 晶体自由载流子吸收 (FCA) 相关的超快光动力学过程提供了技术保障. 本文采用 41 fs 超短脉冲、波长为 532 nm 的激光, 使用 Z 扫描和抽运-探测实验技术, 在改变激发光强条件下获得了自由载流子的浓度、电子-空穴带间复合时间、吸收截面和电子-声子耦合时间, 并且观测到了大光强激发下抽运探测信号的反常变化, 分析了相应的物理机理.

\* 国家自然科学基金 (批准号: 61222406, 11174371)、湖南省自然科学基金 (批准号: 12JJ1001)、教育部博士学科点专项科研基金 (批准号: 20110162120072)、教育部新世纪优秀人才支持计划 (批准号: NCET-11-0512) 和中南大学中央高校基本科研业务费专项资金资助的课题.

† 通信作者. E-mail: junhe@csu.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: gubing@seu.edu.cn

## 2 实验

实验采用光源为 Spectra-Physics 公司的飞秒激光再生放大器系统, 它由飞秒振荡器 (Mai Tai SP), Regen 放大器 (Spitfire ACE-35F-1KXP), 高功率激光抽运源 (Empower 30), 光学参量放大器 (TOPAS-USF-UV2) 四部分组成, 实验波长 532 nm, 输出功率 100 mW, 脉冲宽度 41 fs, 重复频率 2 kHz. 激光脉冲具有近高斯型空间和时间分布.

Z 扫描实验原理及装置在文献 [4] 中有详细介绍. 本实验采用焦距为 15 cm 的消色差会聚透镜, 在  $z = 0$  位置束腰半径约为 25  $\mu\text{m}$ . 利用电控位移台 (Newport: M-ILS250CC) 控制样品在焦点附近沿  $z$  方向的移动, 步长设为 0.5 mm. 通过能量探测器 (OPHIR 公司的 PD10-V2-ROHS, ) 采集样品在  $z$  方向上不同位置处的透射光脉冲能量, 获得透过率随样品位置变化的 Z 扫描曲线.

对于抽运-探测实验, 用分束镜将入射光分成两束, 强的作为抽运光, 弱的作为探测光, 保持两束光的光强比为 10 : 1. 用衰减片调节入射光强, 旋转半波片使两束光的线偏振方向互相垂直. 两束光经过焦距为 25 cm 的透镜聚焦在样品同一位置, 焦点处抽运光和探测光的束腰半径约为 42  $\mu\text{m}$ . 抽运光由光学斩波器进行调制, 探测光经样品透射后到达光电二极管, 获得的电信号输入锁相放大器, 按照斩波器调制频率变化的电信号被提取、放大后输出到计算机系统. 抽运-探测延迟时间由电脑控制移动位移台来完成 (位移精度为 0.5  $\mu\text{m}$ , 对应于延迟时间 3.33 fs), 从而得到探测光在不同延迟时间的透过率变化. 实验中, ZnSe 样品 (合肥科晶材料技术有限公司) 为单晶体材料,  $\langle 100 \rangle$  取向, 厚度为 1 mm, 双面抛光以避免光散射.

## 3 理论

ZnSe 体材料常温下带隙宽度为 2.7 eV, 532 nm 波长激光对应光子能量为 2.34 eV. 如图 1 所示, 当 532 nm 激光入射到 ZnSe 样品时, 价带 (VB) 电子同时吸收两个相同的光子跃迁到导带 (CB) 上方, 价带中形成一个空穴, 导带上得到一个自由电子. 导带上的自由电子随后很快弛豫到达导带底部, 带内弛豫时间为  $\tau_{\text{intra}}$ . 最后导带中的电子和价带中的空穴复合, 回到价带, 带间弛豫时间为  $\tau_{\text{inter}}$ .

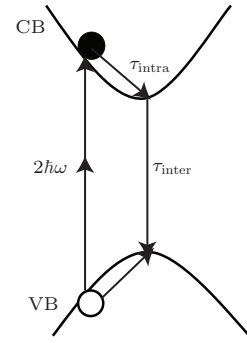


图 1 双光子激发载流子弛豫示意图

Fig. 1. Schematic of two-photon-excited carrier relaxation.

在 Z 扫描实验中, 在空间和时间上具有高斯型分布的激光脉冲沿  $+z$  方向传播, 其强度为

$$I(r, z, t) = \frac{I_0}{1 + z^2/z_0^2} \exp \left[ -\frac{2r^2}{\omega^2(z)} \right] \times \exp \left( -4 \ln 2 \frac{t^2}{\tau_F^2} \right), \quad (1)$$

其中  $I_0 = I(0, 0, 0)$  是焦点在轴处峰值强度.  $\omega^2(z) = \omega_0^2(1 + z^2/z_0^2)$  为高斯光束光斑随  $+z$  方向位置的变化.  $\omega_0, z_0 = \pi\omega_0^2/\lambda$  和  $\lambda$  分别是高斯光束的束腰半径, 瑞利长度和波长.  $\tau_F$  是激光脉冲的半高全宽度 (FWHM).

强激光经过双光子吸收介质后, 透射光强的变化可用如下公式计算 [27]:

$$\frac{\partial I(z, r, t)}{\partial z'} = - \{ \alpha_0 + \alpha_2 I(z, r, t) + \sigma N_{e-h} \} \times I(z, r, t), \quad (2)$$

其中,  $\alpha_0$  是线性吸收系数,  $\sigma$  是自由载流子吸收截面,  $N_{e-h}$  是自由载流子浓度, 它可由以下公式得到:

$$\frac{\partial N_{e-h}}{\partial t} = \frac{\alpha_2 I^2(z, r, t)}{2\hbar\omega} - \frac{N_{e-h}}{\tau}, \quad (3)$$

其中,  $\tau$  是双光子激发产生的自由载流子总的弛豫时间. 对于 ZnSe 体材料

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_{\text{inter}}} + \frac{1}{\tau_{\text{intra}}} + \dots$$

由于 ZnSe 体材料的  $\tau_{\text{inter}}$  在亚纳秒、纳秒量级, 远大于  $\tau_{\text{intra}}$  的亚皮秒、皮秒量级 [5], 因此可认为  $\tau$  主要由  $\tau_{\text{intra}}$  主导.

通过方程 (1)—(3) 可模拟不同光强下的 Z 扫描曲线. 最近的理论研究表明: 在低光强下, 材料表现为双光子吸收效应; 当激发强度超过某一临界光强时材料表现为双光子和五阶非线性吸收效应共存, 其有效五阶非线性吸收来源于双光子感应载流子吸收 [28].

### 4 实验结果与讨论

为了获得 ZnSe 样品的双光子吸收系数和分析非线性吸收机理, 我们进行了不同光强激发下的开孔 Z 扫描实验. 图 2 为不同光强下开孔 Z 扫描实验曲线图, 黑色实线为采用方程 (1)–(3) 理论拟合的 Z 扫描曲线. Z 扫描实验信号呈现出关于焦点对称分布的透过率降低, 并且随着入射光强增加谷的深度加深. 考虑到 532 nm 波长的光子能量在 2.34 eV, 而样品的带隙为 2.7 eV, Z 扫描实验信号主要来自于双光子吸收 [29]. 在低光强下 (约为 4 GW/cm<sup>2</sup>) 通过理论拟合使之与实验曲线最佳匹配, 得到双光子吸收系数  $\alpha_2$  为 4.1 cm/GW, 接近 ZnSe 体材料双光子吸收系数理论值与实验测量值 [22,30]. 值得注意的是, 随着激发光强的增大, 拟合得出的有效双光子吸收系数会随激发光强的增大而增大 (见图 2 的插图). 这是因为在高光强激发下, ZnSe 晶体中自由载流子吸收效应不能忽略. 采用时间平均效应的 Z 扫描表征技术时, 双光子感应载流子吸收可等效为有效五阶非线性吸收过程 [28].

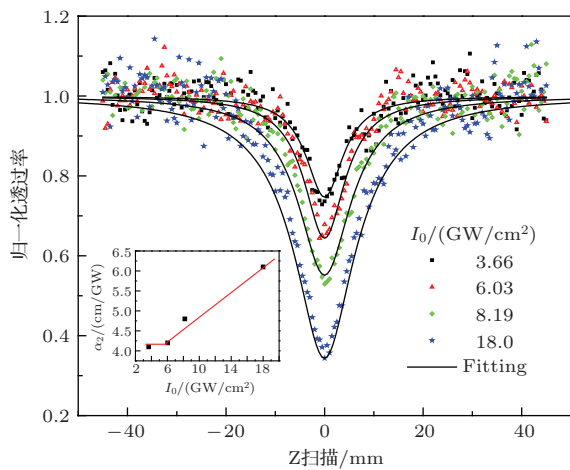


图 2 (网刊彩色) 不同入射光强下开孔 Z 扫描实验曲线  
Fig. 2. (color online) Open aperture Z-scan traces under different excitation intensities.

为研究自由载流子的超快动力学过程, 进行了不同光强激发下的抽运-探测实验. 图 3 为六个不同光强下抽运-探测实验曲线,  $I_0$  为样品处在焦点位置时激光照在样品前表面的抽运光峰值功率密度. 图 3 显示在零延迟时刻瞬态信号达到极大

值, 而且零延迟时刻瞬态信号随着抽运光光强的增加而线性增加 (见图 3 的插图), 这是因为零延迟时刻只有瞬态非线性效应对探测光透过率变化有贡献, 而观察到的瞬态非线性效应来源于 ZnSe 晶体的带间双光子吸收, 同时也说明在本实验条件下未出现双光子吸收饱和等其他瞬态非线性效应 [9,29]. 图 3 显示, 高抽运光场激发下弛豫信号分成两个部分, 即在双光子吸收之后信号有一个快速的上升 (2 ps), 随后有一个缓慢的下降 (大于 100 ps). 快速上升信号代表光激发载流子的热弛豫过程 (电子-声子耦合), 缓慢下降信号代表带内自由载流子吸收过程, 通过双指数函数拟合可以得到两个时间常数即为理论部分给出的  $\tau_{intra}$  和  $\tau_{inter}$ . 我们可以从  $\tau_{intra}$  估算 ZnSe 晶体的电子-声子耦合时间常数约为 30 fs [17,31]. 注意到双光子自关联响应时间随着激发光强的变化也会略有改变, 这表明非线性折射对群速度色散有影响. 此外, 自由载流子吸收信号幅度与抽运光光强的平方成正比 (见图 3 的插图), 这再次证明了零延迟时刻瞬态信号源自于带间双光子吸收过程. 当  $I_0$  大于 28 GW/cm<sup>2</sup> 时, 自由载流子吸收信号幅度减小的过程变快了, 这表明有新的效应出现并引起了探测光透过率的变化. 推测可能的原因: 大光强激发导致载流子浓度变得很大, 载流子与晶格振动作用使晶格温度上升, 从而使 ZnSe 的带隙变窄 [32], 电子-空穴带间复合过程加快,  $\tau_{inter}$  减小. 当激发光强大于 28 GW/cm<sup>2</sup> 时,

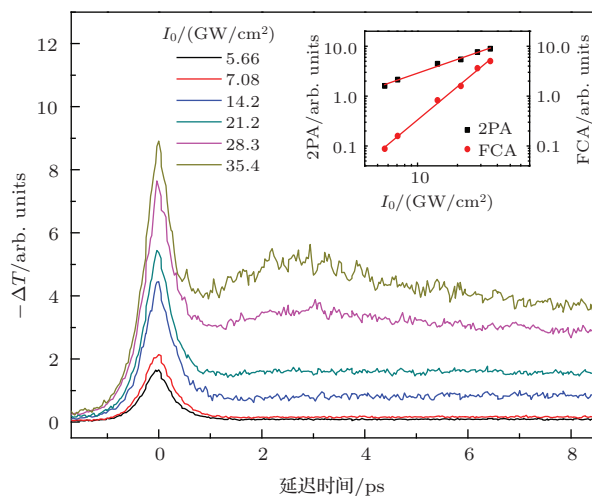


图 3 (网刊彩色) 不同入射光强下抽运探测瞬态透射曲线  
Fig. 3. (color online) Pump-probe transient transmission curves under different pump intensities.



表1 不同激发光强下自由载流子浓度、带间复合时间和吸收截面

Table 1. Free-carrier concentration, interband recombination time and free-carrier absorption cross section under different pump intensities.

激发光强 (GW/cm <sup>2</sup> )	5.66	7.08	14.2	21.2	28.3	35.4
浓度/cm <sup>-3</sup>	6.39 × 10 <sup>16</sup>	1.03 × 10 <sup>17</sup>	3.93 × 10 <sup>17</sup>	7.61 × 10 <sup>17</sup>	1.20 × 10 <sup>18</sup>	1.32 × 10 <sup>18</sup>
电子-空穴带间 复合时间/ps	>100	>100	>100	>100	60	30
自由载流子 吸收截面/cm <sup>2</sup>	4.42 × 10 <sup>-17</sup>	2.71 × 10 <sup>-17</sup>	7.19 × 10 <sup>-18</sup>	3.71 × 10 <sup>-18</sup>	2.36 × 10 <sup>-18</sup>	2.14 × 10 <sup>-18</sup>

自由载流子浓度已经超过10<sup>18</sup> cm<sup>-3</sup>, 这有可能导致样品带隙变窄几百个meV. 此外, 载流子浓度大于10<sup>18</sup> cm<sup>-3</sup>也可能形成电子-空穴等离子体, 载流子与载流子之间的散射作用增强, 导致自由载流子吸收截面减小. 文献[33]也报道了类似的现象. 根据(1)—(3)式, 我们对不同激发光强产生的导带上自由载流子浓度和吸收截面进行计算, 所得结果列举在表1. 从表1可以看出, 随着激发光强的增大, 自由载流子浓度增大, 吸收截面减小, 带间电子-空穴复合时间变短.

## 5 结 论

本文采用Z扫描和抽运-探测实验技术, 使用脉宽为41 fs的532 nm激光研究了ZnSe晶体在双光子激发后自由载流子的超快动力学过程, 得到了ZnSe晶体的双光子吸收系数为4.1 cm/GW、电子-声子耦合时间为30 fs和不同激发光强下自由载流子的吸收截面. 随着激发光强增大, 自由载流子吸收截面减小. 当激发光强大于28 GW/cm<sup>2</sup>、载流子浓度大于10<sup>18</sup> cm<sup>-3</sup>时, 电子-空穴带间复合时间变短, 这归因为ZnSe带隙变窄和电子-空穴等离子体的形成.

## 参考文献

[1] Wang S Y, Hcirsburgh G, Thompson P, Hauksson I, Mullins J T, Prior K A, Cave nett B C 1993 *Appl. Phys. Lett.* **63** 857  
 [2] Zhang X, Fang H, Tang S, Ji W 1997 *Appl. Phys. B* **65** 549  
 [3] Sheik-Bahae M, Said A A, Wei T H, Hagan D J, Van Stryland E W 1990 *IEEE J. Quantum Elect.* **26** 760  
 [4] Wang J, Sheik-Bahae M, Said A A, Hagan D J, Stral E W 1994 *J. Opt. Soc. Am. B* **11** 1009

[5] Bindra K S, Kar A K 2001 *Appl. Phys. Lett.* **79** 3761  
 [6] Gaur A, Sharma D K, Singh K S, Singh N 2007 *Solid State Commun.* **141** 445  
 [7] Yang H, Zhang T Q, Wang S F, Gong Q H 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 1292 (in Chinese) [杨宏, 张铁桥, 王树峰, 龚旗煌 2000 物理学报 **49** 1292]  
 [8] He J, Ji W, Ma G H, Tang S H, Kong S E W, Chow S Y, Zhang X H, Hua Z L, Shi J L 2005 *Phys. Chem. B* **109** 4373  
 [9] Gu B, Fan Y X, Chen J, Wang H T, He J, Ji W 2007 *J. Appl. Phys.* **102** 083101  
 [10] Fan G H, Qu S L, Guo Z Y, Wang Q, Li Z G 2012 *Chin. Phys. B* **21** 047804  
 [11] Jiang Y, Yang S Y, Zhang X L, Teng F, Xu, Z, Hou Y B 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 4860 (in Chinese) [姜燕, 杨盛谊, 张秀龙, 滕枫, 徐征, 侯延冰 2006 物理学报 **55** 4860]  
 [12] Haripadmam P C, John H, Philip R, Gopinath P 2014 *Appl. Phys. Lett.* **105** 221102  
 [13] Mita Y, Akami M, Maruyama S 2000 *Appl. Phys. Lett.* **76** 2223  
 [14] Kong D G, Ao G H, Gao Y C, Chang Q, Wu W Z, Ran L L, Ye H A 2012 *Physica B* **407** 4251  
 [15] Yao G X, Lv L H, M G F, Zhang X Y, Zheng X F, Ji X H, Zhang H, Cui Z F 2012 *Chin. Phys. B* **21** 107801  
 [16] Major A, Yoshino F, Aitchison J S, Smith W P E, Sorokin E, Sorokina I T 2004 *Ap pl. Phys. Lett.* **85** 4606  
 [17] Lami J F, Gilliot P, Hirliemann C 1996 *Phys. Rev. Letters* **77** 1632  
 [18] Canto-Said E J, Hagan D J, Young J, Stryland Van E W 1991 *IEEE J. Quantum Elect.* **27** 10  
 [19] Astakhov G V, Yakovlev D R 2002 *Phys. Rev. B* **65** 165335  
 [20] Ku S A, Tu C M, Chu W C, Luo C W, Wu K H, Yabushita A, Chi C C, Kobayashi T 2013 *Opt. Express* **21** 13930  
 [21] Sahraoui B, Chevalier R, Nguyen Phu X, Rivoire G, Bala W 1996 *J. Appl. Phys.* **80** 4854  
 [22] Krauss T D, Wise F W 1994 *Appl. Phys. Lett.* **65** 1739  
 [23] Jia T Q, Chen H X, Huang M, Zhao F L, Qiu J R, Li R X, Xu Z Z, He X K, Zhan g J, Kuroda H 2005 *Phys. Rev. B* **72** 125429

- [24] Noor S A M, Miyakawa A, Kawata Y, Torizawa M 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 161106
- [25] Masoumeh S M, Wan M M Y, Khor S F, Zainal A T, Tamchek N 2013 *Chin. Phys. B* **22** 117802
- [26] Li X, Feng D H, He H Y, Jia T Q, Shan L F, Sun Z R, Xu Z Z 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 197801 (in Chinese) [李霞, 冯东海, 何红燕, 贾天卿, 单璐繁, 孙真荣, 徐至展 2012 物理学报 **61** 197801]
- [27] He J, Mi J, Li H P, Ji W 2005 *J. Phys. Chem. B* **109** 19184
- [28] Gu B, Sun Y, Ji W 2008 *Opt. Express* **16** 17745
- [29] He J, Qu Y L, Li H P, Mi J, Ji W 2005 *Opt. Express* **13** 9235
- [30] Van Stryland E W, Vanherzeele H, Woodall M A, Soileau M J, Smirl A L, Guha S, Boggess T F 1985 *Opt. Eng.* **24** 613
- [31] Mehendale M, Sivananthan S, Andreas Schroeder W 1997 *Appl. Phys. Lett.* **71** 1089
- [32] Perna G, Capozzi V, Ambrico M 1998 *J. Appl. Phys.* **83** 3337
- [33] Wu W Z, Wang Y G 2015 *Opt. Lett.* **40** 64

# Ultrafast dynamics of free carriers induced by two-photon excitation in bulk ZnSe crystal\*

Yang Zhe<sup>1)</sup> Zhang Xiang<sup>1)</sup> Xiao Si<sup>1)</sup> He Jun<sup>1)†</sup> Gu Bing<sup>2)‡</sup>

1) (*Institute of Super-microstructure and Ultrafast Process in Advanced Materials, School of Physics and Electronics, Hunan Key Laboratory for Super-Microstructure and Ultrafast Process, Central South University, Changsha 410083, China*)

2) (*Advanced Photonics Center, Southeast University, Nanjing 210096, China*)

( Received 14 March 2015; revised manuscript received 26 April 2015 )

## Abstract

Semiconductor materials exhibiting large optical nonlinearities and ultrafast nonlinear response have received extensive attention because of their potential applications in optical limiting, all-optical devices, optical telecommunication, and so on. As a direct-gap II-VI bulk semiconductor, ZnSe crystal has been exploited as the nonlinear optical devices in the regimes of nanoseconds and picoseconds during the past years. Owing to today's fast advance of laser sources with ultrashort femtosecond pulse duration, it is possible to investigate the ultrafast optical nonlinearities in the bulk ZnSe crystal.

In this paper, we experimentally investigate the ultrafast dynamics of free-carriers induced by two-photon excitation in the bulk ZnSe crystal. By performing open-aperture Z-scan experiments with 41 fs laser pulses at the wavelength of 532 nm under the condition of low excitation intensity, the two-photon absorption coefficient is measured. As the excitation intensity exceeds a critical value, the interplay between third- and fifth-order nonlinear absorption processes is observed. To evaluate the ultrafast dynamics of free carriers, we have carried out femtosecond time-resolved degenerate pump-probe measurements with the same laser system used for Z-scan experiments in different levels of pump intensities. It is shown that the transient absorption signals peaked at the zero delay is a linearly increasing function of pump intensity, indicating that the observed instantaneous nonlinear absorption is dominated by the interband two-photon absorption process. At moderate irradiance, the transient absorption signals obviously indicate two components, arising from the two-photon absorption-induced free-carrier absorption, which is equivalent to the fifth-order nonlinear absorption process. Under the excitation of relatively high pump intensity, the magnitude of the reduction of free-carrier absorption signal becomes faster, suggesting that the ZnSe crystal exhibits a new effect and causes a transmittance change of the probe light. The presumable reasons are as follows: intense irradiances will result in the increase of carrier concentration and the rise of the lattice temperature as well as the narrowing of the band gap in the ZnSe crystal, which accelerates the electron-hole interband recombination process. Accordingly, the electron-hole recombination time decreases. Furthermore, when the carrier concentration is larger than  $10^{18} \text{ cm}^{-3}$ , the occurrence of the electron-hole plasma is significant. At the same time, the enhancement of the scattering among the carriers results in the reduction of the free carrier absorption cross section. In summary, it is found that the free-carrier absorption cross section decreases whereas the electron-hole recombination time becomes shorter in ZnSe crystal as the excitation intensity increases, owing to both the narrowing of band gap and the occurrence of electron-hole plasma.

**Keywords:** two-photon absorption, free carrier absorption, ZnSe crystal

**PACS:** 79.20.Ws, 42.65.Re, 78.40.Fy

**DOI:** 10.7498/aps.64.177901

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61222406, 11174371), the Natural Science Foundation of Hunan Province, China (Grant No. 12JJ1001), the Joint Specialized Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education, MOE, China (Grant No. 20110162120072), the Program for New Century Excellent Talents in University of China (Grant No. NCET-11-0512), the Fundamental Research Funds for the Central Universities of Central South University, China.

† Corresponding author. E-mail: [junhe@csu.edu.cn](mailto:junhe@csu.edu.cn)

‡ Corresponding author. E-mail: [gubing@seu.edu.cn](mailto:gubing@seu.edu.cn)