

Fig. S1 EDS analysis for (a) $x = 0.04$, (b) $x = 0.00$, (c) $x = -0.02$, (d) $x = -0.04$ and (e) $x = -0.08$ ceramics

Figure S1 presents the EDS results of KNLNS ceramics. The atomic ratio of K reduces gradually with the decrease of x : for the samples with $x = 0.04$, 0.00 , -0.02 and -0.04 , the relative concentrations of K/Nb are about 38.2%, 35.3%, 34.1% and 33.1%, respectively; and the relative concentrations of K/Na are about 91.5%, 88.0%, 80.4% and 77.1%, respectively. Such results correspond to the expectation of the experiment.

$T(^{\circ}\text{C})$	$x = 0.04$						$x = 0.00$					
	$R_g (\Omega)$	$C_g (\text{F})$	τ_g	$R_{gb} (\Omega)$	$C_{gb} (\text{F})$	τ_{gb}	$R_g (\Omega)$	$C_g (\text{F})$	τ_g	$R_{gb} (\Omega)$	$C_{gb} (\text{F})$	τ_{gb}
300	1.24×10^5	2.92×10^{-9}	3.62×10^{-4}	2.10×10^6	1.11×10^{-9}	2.33×10^{-3}	1.68×10^6	5.61×10^{-10}	9.42×10^{-4}	5.79×10^6	5.94×10^{-10}	3.44×10^{-3}
320	1.08×10^5	5.30×10^{-9}	5.70×10^{-4}	2.13×10^6	1.81×10^{-9}	3.86×10^{-3}	6.09×10^5	6.77×10^{-10}	4.12×10^{-4}	3.54×10^6	6.29×10^{-10}	2.23×10^{-3}
340	1.85×10^5	4.08×10^{-9}	7.54×10^{-4}	2.62×10^6	1.72×10^{-9}	4.51×10^{-3}	5.12×10^5	7.83×10^{-10}	4.01×10^{-4}	2.77×10^6	8.76×10^{-10}	2.43×10^{-3}
360	2.84×10^5	2.39×10^{-9}	6.79×10^{-4}	2.84×10^6	1.30×10^{-9}	3.69×10^{-3}	3.87×10^5	1.64×10^{-9}	6.35×10^{-4}	2.33×10^6	1.64×10^{-9}	3.82×10^{-3}
380	2.95×10^5	1.52×10^{-9}	4.48×10^{-4}	2.19×10^6	1.07×10^{-9}	2.34×10^{-3}	2.70×10^5	2.78×10^{-9}	7.51×10^{-4}	1.45×10^6	2.52×10^{-9}	3.65×10^{-3}
400	2.43×10^5	9.33×10^{-10}	2.26×10^{-4}	1.45×10^6	8.74×10^{-10}	1.27×10^{-3}	2.78×10^5	1.67×10^{-9}	4.64×10^{-4}	7.85×10^5	1.99×10^{-9}	1.56×10^{-3}
420	2.42×10^5	9.30×10^{-10}	2.25×10^{-4}	1.44×10^6	8.70×10^{-10}	1.26×10^{-3}	1.59×10^5	1.19×10^{-9}	1.89×10^{-4}	4.25×10^5	1.88×10^{-9}	7.99×10^{-4}
440	1.91×10^4	5.51×10^{-10}	1.05×10^{-5}	8.00×10^5	7.52×10^{-10}	6.02×10^{-4}	8.05×10^4	9.73×10^{-10}	7.83×10^{-4}	2.07×10^5	1.63×10^{-9}	3.37×10^{-4}
460	1.58×10^4	4.72×10^{-10}	7.46×10^{-6}	6.26×10^5	6.91×10^{-10}	4.33×10^{-4}	3.78×10^4	8.13×10^{-10}	3.07×10^{-5}	1.07×10^5	1.36×10^{-9}	1.46×10^{-4}
480	1.09×10^4	4.37×10^{-10}	4.77×10^{-6}	4.62×10^4	6.44×10^{-10}	2.98×10^{-5}	2.63×10^4	5.07×10^{-10}	1.33×10^{-5}	7.61×10^4	1.14×10^{-9}	8.68×10^{-4}
$T(^{\circ}\text{C})$	$x = -0.02$						$x = -0.04$					
	$R_g (\Omega)$	$C_g (\text{F})$	τ_g	$R_{gb} (\Omega)$	$C_{gb} (\text{F})$	τ_{gb}	$R_g (\Omega)$	$C_g (\text{F})$	τ_g	$R_{gb} (\Omega)$	$C_{gb} (\text{F})$	τ_{gb}
300	2.71×10^4	2.65×10^{-10}	7.18×10^{-6}	6.46×10^4	1.46×10^{-7}	9.43×10^{-3}	9.75×10^4	3.16×10^{-10}	3.08×10^{-5}	7.35×10^4	4.80×10^{-8}	3.53×10^{-3}
320	1.95×10^4	3.08×10^{-10}	6.01×10^{-6}	8.99×10^4	1.66×10^{-7}	1.49×10^{-2}	2.14×10^4	3.06×10^{-10}	6.55×10^{-6}	5.19×10^4	1.46×10^{-7}	7.8×10^{-3}
340	1.18×10^4	6.73×10^{-10}	7.91×10^{-6}	1.33×10^5	1.30×10^{-7}	1.73×10^{-2}	1.16×10^3	3.10×10^{-10}	3.60×10^{-6}	4.38×10^4	2.04×10^{-7}	8.94×10^{-3}
360	1.07×10^4	3.22×10^{-9}	3.45×10^{-5}	1.20×10^5	1.03×10^{-7}	1.24×10^{-2}	8.01×10^3	4.09×10^{-10}	3.28×10^{-6}	4.22×10^4	2.10×10^{-7}	8.86×10^{-3}
380	2.00×10^4	1.81×10^{-9}	3.62×10^{-5}	9.68×10^4	5.32×10^{-8}	5.15×10^{-3}	5.45×10^3	7.30×10^{-10}	3.98×10^{-6}	3.80×10^4	1.95×10^{-7}	7.41×10^{-3}
400	3.00×10^4	6.91×10^{-10}	2.07×10^{-5}	4.96×10^4	1.32×10^{-8}	6.55×10^{-4}	4.77×10^3	1.92×10^{-9}	9.16×10^{-6}	2.60×10^4	1.58×10^{-7}	4.11×10^{-3}
420	1.60×10^4	6.18×10^{-10}	9.89×10^{-6}	2.59×10^4	1.97×10^{-8}	5.10×10^{-4}	5.99×10^3	1.50×10^{-9}	8.99×10^{-6}	2.08×10^4	1.31×10^{-7}	2.72×10^{-3}
440	1.04×10^4	5.23×10^{-10}	5.44×10^{-6}	1.53×10^4	3.04×10^{-8}	4.65×10^{-4}	7.45×10^3	8.91×10^{-10}	6.64×10^{-5}	1.60×10^4	8.32×10^{-8}	1.33×10^{-3}
460	6.16×10^3	3.99×10^{-10}	2.46×10^{-6}	8.75×10^3	3.48×10^{-8}	3.05×10^{-4}	6.36×10^3	6.44×10^{-10}	4.10×10^{-6}	1.02×10^4	5.69×10^{-8}	5.80×10^{-4}
480	3.71×10^3	3.16×10^{-10}	1.17×10^{-6}	5.49×10^3	2.72×10^{-8}	1.49×10^{-4}	4.67×10^3	5.14×10^{-10}	2.40×10^{-6}	7.20×10^3	3.37×10^{-8}	2.43×10^{-4}

Table S1 Resistance, capacitance and time constant (τ , where $\tau = RC$) of grain (R_g , C_g) and grain boundary (R_{gb} , C_{gb}) of $x = 0.04$, $x = 0.00$, $x = -0.02$ and $x = -0.04$ ceramics after fitting with an electrical circuit shown in Fig. 5a

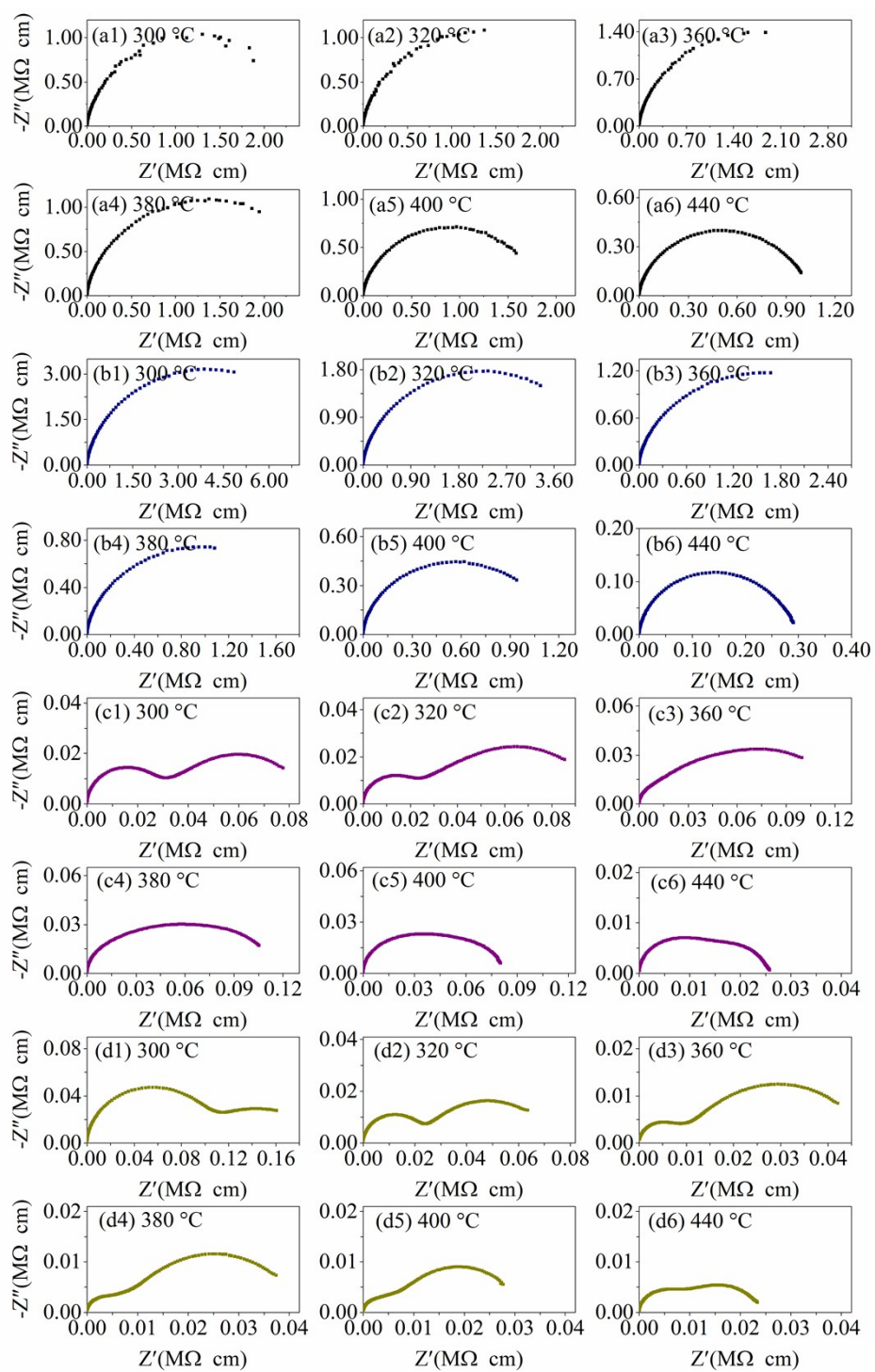


Fig. S2 Impedance complex plane plot at different temperatures for (a) $x = 0.04$, (b) $x = 0.00$, (c) $x = -0.02$ and (d) $x = -0.04$ ceramics