

Supplementary material for

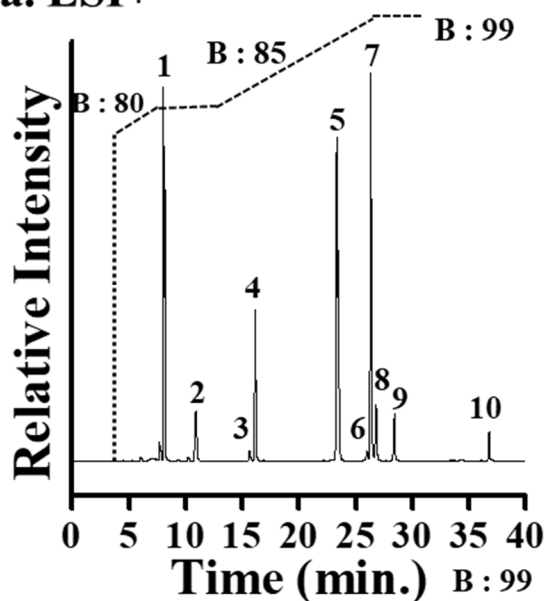
Perturbations of lipids and oxidized phospholipids in lipoproteins of patients with postmenopausal osteoporosis by asymmetrical flow field-flow fractionation and nanoflow UHPLC-ESI-MS/MS

Kang Geun Lee, Gwang Bin Lee, Joon Seon Yang, and Myeong Hee Moon*

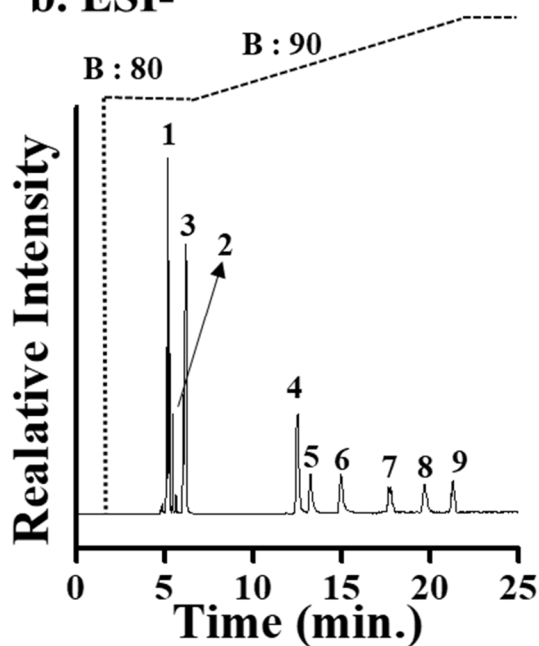
Department of Chemistry, Yonsei University, Seoul 03722, Korea

Table of Contents

Figure S1.....	S-2
Figure S2.....	S-3
Figure S3	S-4
Figure S4	S-5
Table S1.....	S-6
Table S2.....	S-7
Table S3	S-8
Table S4	S-9
Table S5	S-18
Table S6	S-21

a. ESI+

- 1 LPC 16:0
- 2 LPE 18:0
- 3 PC 12:0/12:0
- 4 PE 12:0/12:0
- 5 SM d18:1/16:0
- 6 PE 16:0/16:0
- 7 PC P 18:0/22:6
- 8 PE P 18:0/22:6
- 9 DG 16:0_18:1
- 10 TG 18:0/18:0/18:1

b. ESI-

- 1 LPA 14:0
- 2 LPI 20:4
- 3 LPG 14:0
- 4 PG 15:0/15:0
- 5 PI 16:0/18:2
- 6 PI 16:0/18:1
- 7 Cer d18:1/14:0
- 8 PG 18:0/18:0
- 9 SulfoHexCer d18:1/24:0

Figure S1. Base peak chromatograms of lipid standards in a) positive and b) negative ion mode of nUHPLC-ESI-MS/MS. Dotted lines represent the gradient elution condition represented with the increase of the composition of mobile phase B.

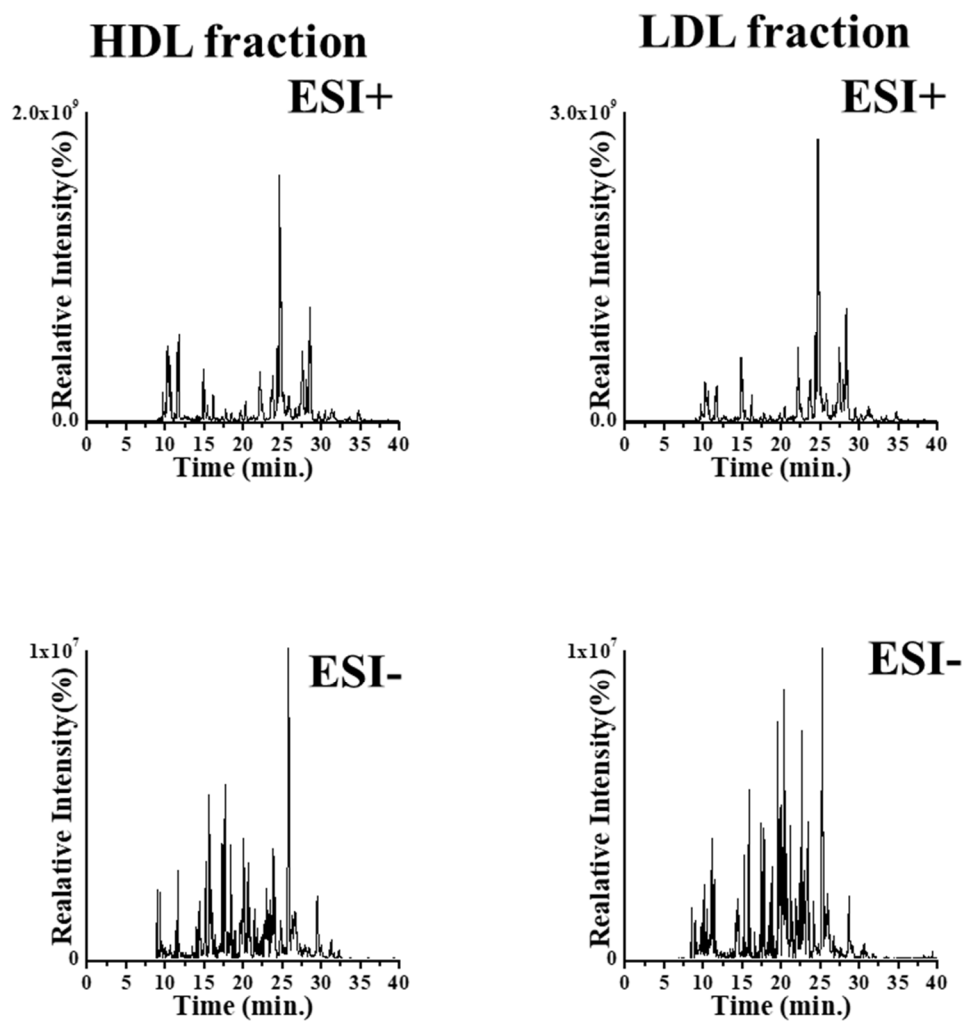


Figure S2. BPC's of lipid extracts from HDL and LDL fraction of a plasma sample pooled with patients (PMOp) and controls obtained by nUHPLC-ESI-MS/MS.

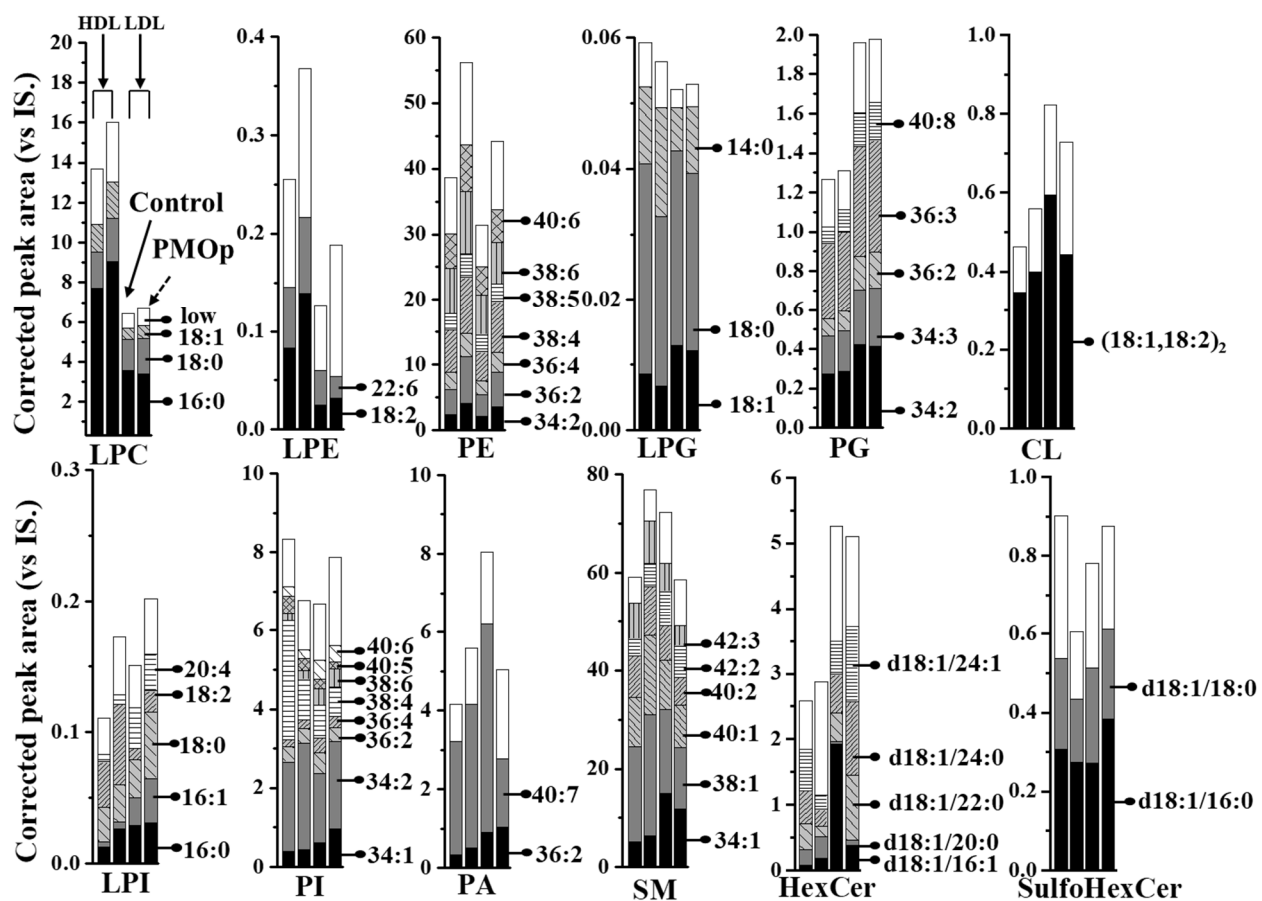


Figure S3. Stacked bar graphs of lipid species showing the summed amounts of (>1.5-folds and $p < 0.05$) in PMOp (n=10) groups in comparison to controls (n=10).

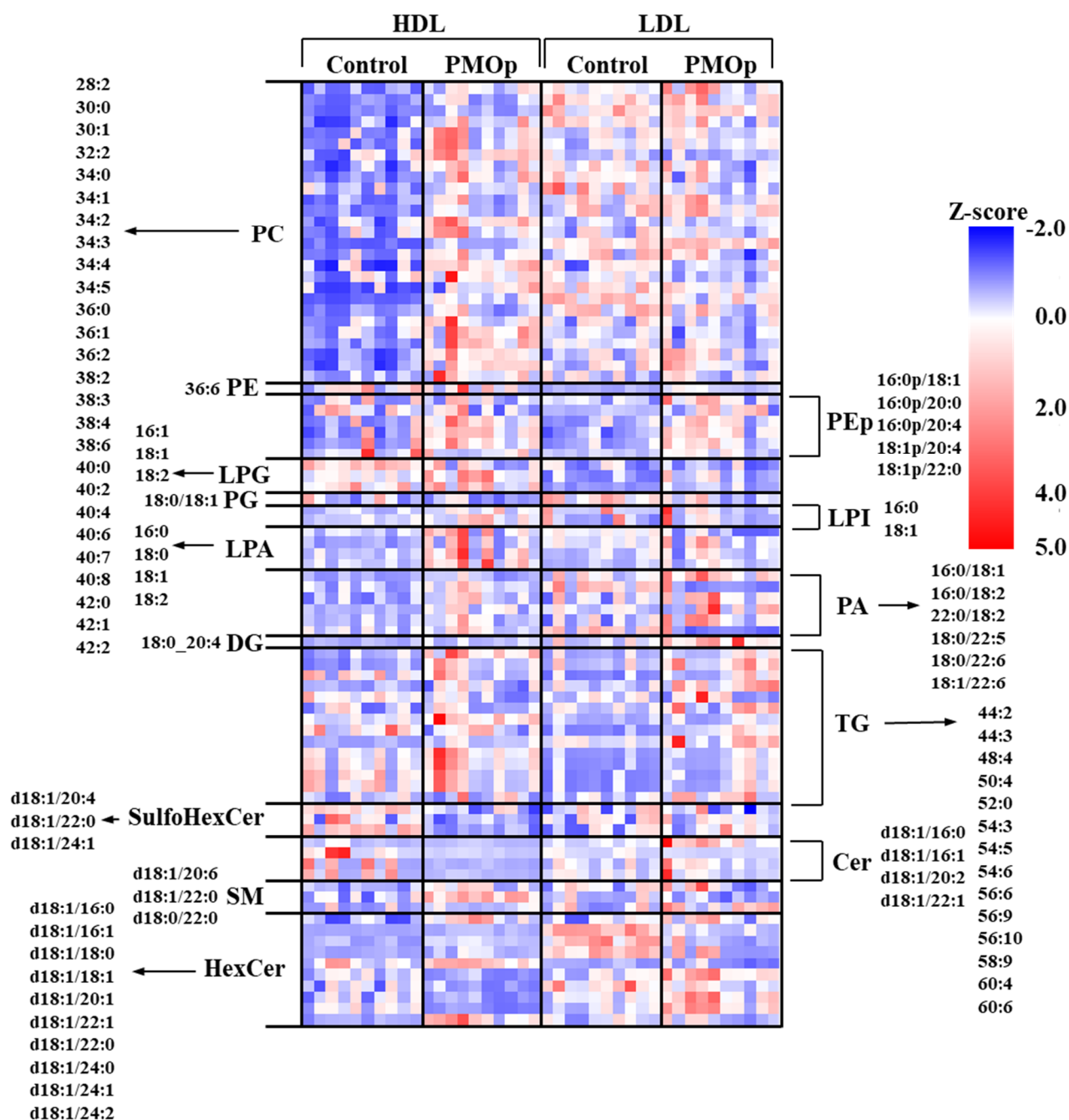


Figure S4. Heat map of selected lipid species showing the significant difference (>1.5 -folds and $p < 0.05$) in PMOp (n=10) groups in comparison to controls (n=10).

Table S1. Demographic data for control and PMOp patients.

variables	control (n=10)	PMOp (n=10)
age (years)	72.1 $\pm$ 3.9	60.6 $\pm$ 7.9
height (cm)	150.8 $\pm$ 6.1	151.0 $\pm$ 5.2
weight (kg)	56.6 $\pm$ 7.1	51.8 $\pm$ 4.0
BMI (kg/m ²)	24.8 $\pm$ 1.7	22.7 $\pm$ 2.3

Abbreviations: PMOp : PostMenopausal Osteoporosis, BMI : Body Mass Index

Table S2. List of lipid internal standards and their precursor ion, product ion and collision energy used in SRM quantification process.

class	molecular species	precursor ion		product ion	collision energy (V)
		detected form	m/z		
LPC	17:0	[M+H] ⁺	510.5	[Pcho+H] ⁺	25
PC	13:0/13:0	[M+H] ⁺	650.5	[Pcho+H] ⁺	40
LPE	17:1	[M+H] ⁺	466.5	[M+H-141] ⁺	20
PE	17:0/17:0	[M+H] ⁺	720.5	[M+H-141] ⁺	20
LPA	17:0	[M-H] ⁻	423.5	[RCOO] ⁻	40
PA	17:0/17:0	[M-H] ⁻	675.5	[RCOO] ⁻	40
LPG	17:1	[M-H] ⁻	495.5	[RCOO] ⁻	35
PG	15:0/15:0	[M-H] ⁻	693.5	[RCOO] ⁻	35
LPI	17:1	[M-H] ⁻	583.5	[RCOO] ⁻	50
PI	12:0/13:0	[M-H] ⁻	711.5	[RCOO] ⁻	50
SulfoHexCer	d18:1/17:0	[M+H] ⁺	794.5	[d18:1] ⁺	40
SM	d18:1/17:0	[M+H] ⁺	717.5	[Pcho+H] ⁺	30
Cer	d18:1/17:0	[M+H] ⁺	552.5	[d18:1] ⁺ & [d20:1] ⁺	30
HexCer	d18:1/17:0	[M+H] ⁺	714.5	[d18:1] ⁺	40
CL	(14:1) ₃ (15:1)	[M-H] ⁻	622.5	[M-H] ⁻	40
DG	17:0/17:0 D ₅	[M+NH ₄] ⁺	619.5	[M+NH ₄ -RCOONH ₄] ⁺	20
TG	17:0/17:0/17:1 D ₅	[M+NH ₄] ⁺	870.7	[M+NH ₄ -RCOONH ₄] ⁺	25

* Pcho : phosphocholine

Table S3. Limit of detection (LOD) and limit of quantification (LOQ) of lipid standard lists spiked to each lipid extract.

class	molecular species	HDL		LDL			
		LOD(pmol)	LOQ(pmol)	R ²	LOD(pmol)	LOQ(pmol)	R ²
LPC	17:0	0.005	0.015	0.983	0.005	0.017	0.987
PC	13:0/13:0	0.003	0.009	0.985	0.003	0.010	0.995
LPE	17:1	0.023	0.075	0.993	0.025	0.083	0.985
PE	17:0/17:0	0.010	0.031	0.984	0.009	0.028	0.982
LPG	17:1	0.011	0.036	0.996	0.010	0.033	0.997
PG	15:0/15:0	0.017	0.054	0.993	0.015	0.049	0.972
LPI	17:1	0.020	0.067	0.993	0.018	0.061	0.993
LPA	17:0	0.006	0.017	0.998	0.005	0.015	0.995
PA	17:0/17:0	0.010	0.030	0.998	0.009	0.027	0.995
DG	17:0/17:0	0.007	0.024	0.996	0.008	0.027	1.000
TG	17:0/17:1/17:0	0.014	0.045	0.981	0.015	0.050	0.980
SM	d18:1/17:0	0.015	0.050	0.998	0.017	0.055	0.999
Sulfo HexCer	d18:1/17:0	0.013	0.041	0.997	0.014	0.046	0.997
Cer	d18:1/17:0	0.013	0.043	0.997	0.014	0.047	1.000
HexCer	d18:1/17:0	0.005	0.017	0.999	0.006	0.019	0.994
CL	(14:0) ₄	0.041	0.135	0.992	0.045	0.150	0.995

Table S4. Corrected peak area value and fold ratio (PMOp/Control) of identified lipids in HDL and LDL fractions obtained by nUHPLC–ESI–MS/MS. Species emphasized with bold represents > 1.5-fold change and underlined numerals for high abundance in each lipid class. * for p-value < 0.05.

class	molecular species	m/z	HDL			LDL				
			control (n=10)	PMOp (n=10)	PMOp/control	abun. (%)	control (n=10)	PMOp (n=10)	PMOp/control	abun. (%)
LPC (12)	14:0	468.5	0.24±0.02	0.30±0.02	1.25±0.15	1.74	0.01±0.00	0.02±0.00	1.56±0.20	0.23
	16:0	496.5	7.71±0.76	9.06±0.42	1.17±0.13	<u>56.10</u>	3.58±0.18	3.38±0.09	0.94±0.05	<u>55.46</u>
	16:1	494.5	0.53±0.07	0.60±0.04	1.13±0.17	3.96	0.05±0.00	0.07±0.00	1.53±0.15	0.74
	18:0	524.5	1.81±0.20	2.14±0.08	1.19±0.14	<u>13.05</u>	1.52±0.07	1.77±0.06	1.16±0.06	<u>24.07</u>
	18:1	522.5	1.41±0.10	1.86±0.06	1.32±0.11	<u>10.31</u>	0.59±0.03	0.66±0.02	1.12±0.06	<u>9.20</u>
	20:2	548.5	0.02±0.00	0.03±0.00	1.66±0.17	0.12	0.02±0.00	0.02±0.00	1.15±0.12	0.24
	20:3	546.5	0.20±0.02	0.22±0.01	1.09±0.12	1.46	0.09±0.00	0.11±0.00	1.19±0.08	1.37
	20:4	544.5	0.78±0.08	0.86±0.05	1.10±0.12	5.77	0.24±0.01	0.30±0.01	1.24±0.08	3.86
	20:5	542.5	0.43±0.07	0.30±0.03	0.69±0.13	3.34	0.09±0.01	0.08±0.00	0.85±0.10	1.52
	22:5	570.5	0.11±0.01	0.10±0.01	0.92±0.09	0.76	0.05±0.00	0.05±0.00	1.08±0.09	0.72
	22:6	568.5	0.45±0.05	0.53±0.03	1.16±0.15	3.34	0.15±0.00	0.20±0.01	1.29±0.08	2.40
	24:1	606.5	0.01±0.00	0.01±0.00	1.02±0.18	0.04	0.01±0.00	0.01±0.00	0.85±0.07	0.19
PC (28/48)	28:2	674.5	0.00±0.00	0.01±0.00	3.41±0.40*	0.01	0.01±0.00	0.02±0.00	1.56±0.13	0.01
	30:0	706.5	0.15±0.01	0.31±0.02	2.08±0.21*	0.12	0.55±0.05	0.57±0.03	1.02±0.11	0.34
	32:0	734.5	0.88±0.05	1.70±0.15	1.93±0.20*	0.73	4.48±0.25	4.57±0.25	1.02±0.08	2.75
	32:1	732.5	1.18±0.14	2.06±0.21	1.74±0.27	0.98	2.10±0.19	1.92±0.14	0.91±0.11	1.29
	32:2	730.5	0.17±0.02	0.37±0.03	2.13±0.26*	0.14	0.42±0.04	0.37±0.01	0.87±0.08	0.26
	34:0	762.5	1.18±0.08	2.74±0.16	2.32±0.21*	0.98	1.86±0.13	2.01±0.10	1.08±0.09	1.15
	34:1	760.5	12.14±0.88	27.61±1.08	2.28±0.19*	<u>10.04</u>	18.12±1.66	19.27±0.96	1.06±0.11	<u>11.15</u>
	34:2	758.5	25.60±3.67	46.10±4.31	1.80±0.31*	<u>21.18</u>	26.47±2.00	22.79±1.11	0.86±0.08	<u>16.28</u>
	34:3	756.5	1.18±0.11	2.15±0.21	1.82±0.25*	0.97	2.16±0.17	1.99±0.12	0.92±0.09	1.32
	34:4	754.5	0.05±0.00	0.13±0.01	2.31±0.24*	0.05	0.12±0.01	0.10±0.00	0.85±0.08*	0.07
	34:5	752.5	0.01±0.00	0.01±0.00	1.22±0.53	0.01	0.02±0.00	0.01±0.00	0.43±0.05*	0.01
	36:0	790.5	0.27±0.06	0.54±0.04	1.99±0.43*	0.23	0.68±0.06	0.74±0.03	1.09±0.11	0.42
	36:1	788.5	1.97±0.24	4.07±0.23	2.06±0.28*	1.63	6.69±0.85	8.26±0.46	1.24±0.17	<u>4.11</u>

LPE (6)	36:2	786.5	15.03±0.99	34.41±3.01	2.29±0.25*	<u>12.44</u>	17.89±1.50	18.97±0.90	1.06±0.10	<u>11.00</u>
	36:3	784.5	9.00±1.18	16.46±1.85	1.83±0.32*	<u>7.45</u>	12.13±0.84	11.08±0.65	0.91±0.08	<u>7.43</u>
	36:4	782.5	13.49±1.34	19.67±1.62	1.46±0.18*	<u>11.16</u>	14.53±0.76	11.97±0.62	0.82±0.06	<u>8.99</u>
	36:5	780.5	0.02±0.00	0.01±0.00	0.87±0.20	0.01	0.02±0.00	0.02±0.00	1.31±0.25	0.01
	36:6	778.5	0.08±0.01	0.11±0.01	1.42±0.20	0.06	0.10±0.01	0.09±0.00	0.86±0.08	0.06
	38:2	814.5	0.44±0.02	1.52±0.08	3.44±0.25*	0.36	3.20±0.31	4.07±0.24	1.27±0.14*	1.97
	38:3	812.5	3.50±0.35	6.32±0.95	1.81±0.33*	2.90	6.55±0.68	5.83±0.34	0.89±0.11	<u>4.03</u>
	38:4	810.5	6.75±0.49	12.89±0.97	1.91±0.20*	<u>5.59</u>	9.88±0.75	8.77±0.41	0.89±0.08	<u>6.08</u>
	38:5	808.5	7.72±0.75	10.18±1.06	1.31±0.19	<u>6.39</u>	9.25±0.65	6.20±0.36	0.65±0.06*	<u>5.69</u>
	38:6	806.5	12.77±1.33	20.05±1.96	1.57±0.22	<u>10.57</u>	14.66±1.15	11.05±0.60	0.75±0.07*	<u>9.02</u>
	40:4	838.5	0.18±0.04	0.36±0.04	1.93±0.50*	0.15	0.63±0.07	0.51±0.03	0.81±0.10	0.39
	40:5	836.5	1.90±0.13	2.98±0.45	1.57±0.26	1.57	2.72±0.23	2.31±0.14	0.85±0.09	1.67
	40:6	834.5	4.60±0.27	8.64±0.70	1.87±0.19*	<u>3.81</u>	6.64±0.49	5.65±0.34	0.85±0.08	<u>4.09</u>
	40:7	832.5	0.51±0.06	1.08±0.08	2.12±0.29*	0.42	0.57±0.05	0.54±0.03	0.95±0.09	0.35
	40:8	830.5	0.06±0.01	0.20±0.01	3.38±0.45*	0.05	0.11±0.01	0.11±0.00	0.94±0.11	0.07
	16:0	454.5	0.03±0.01	0.04±0.00	1.50±0.32	10.92	0.01±0.00	0.03±0.00	2.02±0.38	10.47
	18:0	482.5	0.02±0.00	0.02±0.00	1.36±0.34	6.23	0.02±0.00	0.06±0.00	2.61±0.29	<u>19.12</u>
	18:1	480.5	0.03±0.01	0.04±0.00	1.26±0.46	13.04	0.01±0.00	0.02±0.00	2.05±0.37	8.21
	18:2	478.5	0.08±0.01	0.14±0.01	1.67±0.25	<u>32.43</u>	0.03±0.00	0.03±0.00	1.28±0.17	<u>20.00</u>
	20:4	502.5	0.03±0.01	0.04±0.00	1.36±0.24	12.93	0.02±0.00	0.02±0.00	1.25±0.21	14.66
	22:6	526.5	0.06±0.01	0.08±0.01	1.25±0.19	<u>24.46</u>	0.03±0.00	0.02±0.00	0.63±0.09	<u>27.54</u>
PE (16/23)	34:1	718.5	1.26±0.20	1.80±0.29	1.42±0.32	3.34	0.82±0.12	1.38±0.11	1.67±0.29	2.70
	34:2	716.5	2.37±0.17	4.07±0.36	1.72±0.20	<u>6.26</u>	2.12±0.30	3.61±0.44	1.70±0.32	<u>6.94</u>
	36:1	746.5	0.87±0.16	1.06±0.13	1.22±0.27	2.29	0.47±0.07	0.77±0.12	1.65±0.36	1.54
	36:2	744.5	3.91±0.51	7.15±1.11	1.83±0.37	<u>10.35</u>	3.27±0.33	5.26±0.75	1.61±0.28	<u>10.71</u>
	36:3	742.5	1.61±0.09	3.43±0.21	2.13±0.18	4.26	1.35±0.12	2.90±0.19	2.15±0.24	4.43
	36:4	740.5	2.60±0.91	3.54±0.40	1.36±0.50	<u>6.88</u>	2.08±0.26	2.99±0.44	1.43±0.28	<u>6.83</u>
	38:1	774.5	0.12±0.01	0.21±0.01	1.74±0.17	0.32	0.12±0.02	0.14±0.01	1.17±0.23	0.41
	38:2	772.5	0.27±0.03	0.22±0.05	0.82±0.20	0.71	0.11±0.01	0.23±0.01	1.96±0.24	0.38
	38:3	770.5	1.46±0.27	1.89±0.26	1.29±0.30	3.87	1.01±0.06	1.86±0.15	1.84±0.19	3.30
	38:4	768.5	6.44±1.53	8.68±0.80	1.35±0.34	<u>17.02</u>	4.49±0.25	7.89±0.29	1.75±0.12	<u>14.73</u>
	38:5	766.5	2.48±0.40	3.55±0.49	1.43±0.30	<u>6.55</u>	2.59±0.31	2.65±0.38	1.02±0.19	<u>8.49</u>

	38:6	764.5	6.95±0.87	9.51±1.27	1.37±0.25	<u>18.37</u>	6.15±0.74	6.31±0.57	1.03±0.15	<u>20.16</u>
	40:4	796.5	0.28±0.04	0.28±0.04	0.99±0.21	0.74	0.14±0.02	0.22±0.02	1.52±0.25	0.47
	40:5	794.5	1.30±0.27	1.74±0.24	1.34±0.33	3.44	1.01±0.08	1.20±0.17	1.18±0.19	3.32
	40:6	792.5	5.33±0.96	7.14±0.69	1.34±0.27	<u>14.10</u>	4.33±0.58	4.99±0.62	1.15±0.21	<u>14.21</u>
	40:7	790.5	0.56±0.12	0.79±0.09	1.41±0.36	1.48	0.42±0.05	0.49±0.07	1.15±0.22	1.39
PEp	P-16:0/18:1	702.5	0.21±0.08	0.25±0.06	1.17±0.50	3.88	0.17±0.01	0.38±0.03	2.17±0.23*	4.28
(9)	P-16:0/20:0	732.5	0.02±0.01	0.01±0.00	0.83±0.36	0.33	0.01±0.00	0.02±0.00	1.94±0.39*	0.23
	P-16:0/20:2	728.5	0.01±0.00	0.02±0.01	1.84±0.47	0.22	0.02±0.00	0.03±0.00	1.39±0.15	0.45
	P-16:0/20:3	726.5	0.12±0.01	0.23±0.02	1.82±0.25	2.28	0.09±0.01	0.17±0.01	1.88±0.33	2.24
	P-16:0/20:4	724.5	1.42±0.17	3.21±0.31	2.26±0.35*	<u>26.11</u>	1.26±0.14	2.57±0.27	2.05±0.31*	<u>30.98</u>
	P-18:0/20:4	752.5	2.08±0.09	4.85±0.21	2.33±0.14*	<u>38.32</u>	1.53±0.13	4.20±0.21	2.74±0.27*	<u>37.83</u>
	P-18:1/20:4	750.5	1.53±0.22	2.93±0.26	1.91±0.32	<u>28.16</u>	0.94±0.04	2.51±0.18	2.68±0.22*	<u>23.08</u>
	P-18:0/22:0	788.5	0.01±0.00	0.01±0.00	1.34±0.55	0.19	0.03±0.01	0.01±0.00	0.35±0.13	0.74
	P-18:1/22:0	786.5	0.03±0.01	0.02±0.01	0.64±0.27	0.52	0.01±0.00	0.02±0.00	2.33±0.34*	0.17
LPA	14:0	381.5	0.24±0.05	0.11±0.02	0.42±0.12	4.07	0.05±0.01	0.03±0.00	0.55±0.10	0.59
(5)	16:0	409.5	3.18±0.18	7.34±0.36	2.30±0.17*	<u>54.23</u>	4.69±0.54	1.95±0.29	0.41±0.08*	<u>58.62</u>
	18:0	437.5	0.78±0.06	2.42±0.21	3.09±0.36*	13.34	1.83±0.12	2.45±0.27	1.33±0.17	<u>22.95</u>
	18:1	435.5	0.77±0.12	2.01±0.17	2.60±0.45*	13.20	0.81±0.08	1.07±0.09	1.32±0.17	10.12
	18:2	433.5	0.89±0.05	3.09±0.22	3.47±0.32*	15.16	0.62±0.07	1.21±0.13	1.96±0.30*	7.71
PA	16:0/18:1	673.5	0.04±0.01	0.06±0.01	1.63±0.41	0.86	0.10±0.03	0.19±0.02	1.83±0.56*	1.29
(13)	16:0/18:2	671.5	0.20±0.02	0.34±0.03	1.68±0.23*	4.92	0.51±0.06	0.17±0.07	0.34±0.14*	6.35
	18:0/18:1	701.5	0.03±0.01	0.04±0.01	1.13±0.32	0.81	0.06±0.01	0.09±0.01	1.54±0.36	0.71
	18:0/18:2	699.5	0.33±0.04	0.50±0.03	1.53±0.23	<u>8.01</u>	0.91±0.1	1.04±0.07	1.14±0.15	<u>11.30</u>
	18:1/18:2	697.5	0.07±0.03	0.09±0.01	1.30±0.55	1.77	0.06±0.01	0.11±0.01	1.77±0.38	0.75
	18:2/18:2	695.5	0.07±0.02	0.10±0.02	1.41±0.44	1.69	0.15±0.03	0.12±0.01	0.81±0.19	1.89
	20:0/18:1	729.5	0.06±0.01	0.09±0.01	1.52±0.42	1.40	0.16±0.03	0.18±0.02	1.10±0.24	2.04
	18:0/20:4	723.5	0.06±0.01	0.04±0.01	0.61±0.16	1.49	0.07±0.02	0.09±0.01	1.34±0.45	0.83
	18:1/20:5	719.5	0.12±0.03	0.14±0.02	1.16±0.32	2.75	0.27±0.03	0.51±0.03	1.91±0.24	3.34
	22:0/18:2	785.5	0.13±0.01	0.25±0.03	1.90±0.27*	3.24	0.23±0.05	0.38±0.03	1.66±0.41	2.81
	18:0/22:5	749.5	0.04±0.01	0.08±0.01	2.15±0.73*	0.87	0.07±0.01	0.12±0.01	1.78±0.33	0.81
	18:0/22:6	747.5	0.13±0.01	0.19±0.02	1.45±0.18	3.16	0.17±0.03	0.31±0.03	1.86±0.41*	2.07
	18:1/22:6	745.5	2.88±0.19	3.66±0.18	1.25±0.10	<u>69.04</u>	5.29±0.36	1.74±0.67	0.33±0.13*	<u>65.81</u>
LPG	14:0	455.5	0.01±0.00	0.01±0.00	0.79±0.20	<u>14.27</u>	0.01±0.00	0.01±0.00	0.94±0.21	<u>25.14</u>

(7)	16:0	483.5	0.00±0.00	0.00±0.00	1.12±0.20	3.69	0.00±0.00	0.00±0.00	1.11±0.29	2.18
	16:1	481.5	0.00±0.00	0.00±0.00	0.61±0.16*	2.07	0.00±0.00	0.00±0.00	0.80±0.20	0.93
	18:0	511.5	0.03±0.00	0.03±0.00	0.81±0.12*	<u>54.52</u>	0.03±0.00	0.03±0.00	0.91±0.05	<u>56.85</u>
	18:1	509.5	0.01±0.00	0.02±0.00	1.43±0.23	<u>19.76</u>	0.00±0.00	0.01±0.00	1.57±0.17*	12.65
	18:2	507.5	0.00±0.00	0.00±0.00	1.17±0.17	5.41	0.00±0.00	0.00±0.00	1.56±0.25*	1.96
	22:6	555.5	0.00±0.00	0.00±0.00	0.77±0.36	0.28	0.00±0.00	0.00±0.00	0.83±0.35	0.28
PG	16:0/16:0	721.5	0.02±0.00	0.01±0.00	0.74±0.12	1.25	0.02±0.00	0.02±0.00	0.82±0.09	1.20
(15)	16:0/16:1	719.5	0.01±0.00	0.01±0.00	0.92±0.18	0.88	0.04±0.00	0.04±0.00	1.01±0.11	2.01
	16:1/16:1	717.5	0.01±0.00	0.01±0.00	1.17±0.30	0.99	0.03±0.00	0.03±0.00	1.13±0.15	1.41
	18:1/16:0	747.5	0.02±0.00	0.01±0.00	0.87±0.13	1.33	0.02±0.00	0.02±0.00	1.03±0.15	1.05
	16:1/18:1	745.5	0.27±0.02	0.29±0.01	1.05±0.10	<u>21.66</u>	0.42±0.03	0.42±0.02	0.98±0.08	<u>21.61</u>
	16:0/18:3	743.5	0.19±0.02	0.21±0.01	1.09±0.11	<u>15.04</u>	0.28±0.02	0.30±0.01	1.06±0.09	<u>14.31</u>
	18:0/18:1	775.5	0.01±0.00	0.00±0.00	0.65±0.11	0.53	0.01±0.00	0.01±0.00	0.62±0.09*	0.56
	18:1/18:1	773.5	0.09±0.01	0.10±0.00	1.07±0.11	<u>7.26</u>	0.17±0.02	0.18±0.02	1.08±0.15	<u>8.70</u>
	18:2/18:1	771.5	0.38±0.04	0.40±0.02	1.06±0.11	<u>30.28</u>	0.56±0.04	0.57±0.03	1.01±0.10	<u>28.46</u>
	18:2/18:2	769.5	0.04±0.00	0.04±0.00	0.95±0.12	3.19	0.07±0.01	0.07±0.00	0.94±0.11	3.55
	20:4/18:1	795.5	0.08±0.01	0.06±0.00	0.71±0.11	6.50	0.10±0.01	0.07±0.00	0.72±0.07	5.02
	22:6/16:0	789.5	0.03±0.00	0.02±0.00	0.66±0.12	2.19	0.03±0.00	0.03±0.00	0.87±0.13	1.54
	22:6/16:1	791.5	0.02±0.00	0.02±0.00	0.98±0.19	1.44	0.02±0.00	0.02±0.00	0.99±0.14	1.27
	18:1/22:6	819.5	0.01±0.00	0.01±0.00	1.04±0.18	0.78	0.01±0.00	0.01±0.00	0.84±0.14	0.71
	18:2/22:6	817.5	0.08±0.01	0.11±0.01	1.36±0.19	<u>6.78</u>	0.17±0.01	0.19±0.01	1.14±0.12	<u>8.62</u>
LPI	16:0	571.5	0.01±0.00	0.03±0.00	2.12±0.29*	<u>11.22</u>	0.03±0.00	0.03±0.01	1.08±0.23	<u>19.03</u>
(9)	16:1	569.5	0.00±0.00	0.01±0.00	1.26±0.50	3.67	0.02±0.00	0.03±0.00	1.53±0.19	<u>14.32</u>
	18:0	599.5	0.03±0.00	0.03±0.00	1.08±0.22	<u>23.87</u>	0.03±0.00	0.05±0.01	1.79±0.39	<u>19.03</u>
	18:1	597.5	0.01±0.00	0.02±0.00	1.83±0.39*	10.31	0.01±0.00	0.02±0.00	1.17±0.22	9.36
	18:2	595.5	0.03±0.01	0.06±0.02	1.78±0.61	<u>31.35</u>	0.01±0.00	0.02±0.01	1.78±0.49	5.95
	18:3	593.5	0.01±0.00	0.01±0.00	1.87±0.97	4.97	0.00±0.00	0.00±0.00	1.22±0.75	2.35
	20:3	621.5	0.01±0.00	0.00±0.00	0.80±0.31	4.67	0.00±0.00	0.01±0.00	1.35±0.57	2.81
	20:4	619.5	0.01±0.00	0.01±0.00	1.23±0.49	5.06	0.03±0.00	0.03±0.00	0.90±0.14	<u>20.44</u>

PI (21)	22:6	643.5	0.01±0.00	0.01±0.00	1.71±0.50	4.87	0.01±0.00	0.02±0.00	1.65±0.36	6.69
	16:0/16:0	809.5	0.07±0.01	0.06±0.01	0.90±0.14	0.80	0.06±0.01	0.05±0.01	0.87±0.17	0.89
	16:0/16:1	807.5	0.12±0.01	0.04±0.00	0.34±0.04*	1.38	0.02±0.00	0.01±0.00	0.82±0.17	0.26
	18:0/16:0	837.5	0.14±0.03	0.19±0.01	1.37±0.28	1.65	0.36±0.01	0.87±0.04	2.40±0.15*	5.41
	18:1/16:0	835.5	0.41±0.11	0.44±0.04	1.09±0.31	<u>4.88</u>	0.62±0.02	0.96±0.09	1.55±0.15	<u>9.22</u>
	18:2/16:0	833.5	2.25±0.24	2.68±0.21	1.19±0.16	<u>27.01</u>	1.74±0.21	2.21±0.05	1.27±0.15	<u>26.00</u>
	18:2/16:1	831.5	0.05±0.00	0.04±0.01	0.80±0.16	0.63	0.08±0.02	0.08±0.01	0.91±0.27	1.24
	18:0/18:0	865.5	0.05±0.01	0.06±0.01	1.43±0.90	0.54	0.06±0.01	0.08±0.01	1.31±0.25	0.89
	18:0/18:1	863.5	0.29±0.08	0.35±0.02	1.22±0.33	3.42	0.13±0.01	0.37±0.02	2.83±0.28*	1.94
	18:0/18:2	861.5	0.38±0.05	0.37±0.07	0.99±0.21	4.52	0.54±0.07	0.36±0.03	0.67±0.11	<u>8.08</u>
	18:1/18:2	859.5	0.09±0.03	0.07±0.01	0.85±0.30	1.04	0.15±0.02	0.16±0.01	1.06±0.17	2.23
	18:2/18:2	857.5	0.19±0.02	0.24±0.02	1.22±0.15	2.33	0.36±0.05	0.28±0.01	0.78±0.11	<u>5.45</u>
	18:2/18:3	855.5	0.08±0.01	0.13±0.02	1.67±0.37	0.95	0.20±0.02	0.16±0.01	0.78±0.10	3.00
	18:0/20:2	889.5	0.13±0.01	0.12±0.01	0.90±0.11	1.57	0.17±0.11	0.24±0.02	1.38±0.85	2.58
	18:0/20:3	887.5	0.11±0.01	0.09±0.01	0.79±0.13	1.33	0.07±0.01	0.11±0.01	1.56±0.26	1.04
	18:0/20:4	885.5	3.02±0.43	1.01±0.07	0.33±0.05*	<u>36.19</u>	0.84±0.06	0.73±0.04	0.87±0.08	<u>12.50</u>
	18:0/20:5	883.5	0.06±0.04	0.06±0.01	0.98±0.60	0.76	0.03±0.00	0.05±0.00	1.75±0.16*	0.41
	16:0/22:6	881.5	0.18±0.02	0.23±0.02	1.33±0.19	2.11	0.41±0.05	0.47±0.06	1.15±0.20	<u>6.10</u>
	18:0/22:4	913.5	0.03±0.01	0.04±0.01	1.37±0.49	0.34	0.10±0.03	0.07±0.01	0.67±0.20	1.47
	18:0/22:5	911.5	0.45±0.10	0.31±0.08	0.69±0.24	<u>5.38</u>	0.25±0.05	0.18±0.01	0.70±0.15	3.77
	18:0/22:6	909.5	0.25±0.05	0.21±0.02	0.83±0.18	3.05	0.48±0.06	0.41±0.03	0.85±0.12	<u>7.20</u>
Sulfo HexCer (5)	18:1/22:6	907.5	0.01±0.00	0.01±0.00	1.18±0.27	0.10	0.02±0.00	0.02±0.00	0.84±0.25	0.32
	d18:1/16:0	780.5	0.31±0.06	0.27±0.02	0.90±0.19	<u>33.94</u>	0.27±0.03	0.38±0.02	1.41±0.19	<u>34.55</u>
	d18:1/18:0	808.5	0.23±0.05	0.16±0.02	0.70±0.16	<u>25.18</u>	0.24±0.04	0.23±0.02	0.95±0.17	<u>30.68</u>
	d18:1/20:4	828.5	0.13±0.02	0.08±0.01	0.62±0.12*	14.71	0.10±0.01	0.08±0.01	0.87±0.12	13.21
	d18:1/22:0	864.5	0.14±0.02	0.06±0.01	0.44±0.08*	16.22	0.13±0.02	0.12±0.02	0.96±0.21	16.59
	d18:1/24:1	890.5	0.09±0.03	0.02±0.00	0.27±0.08*	9.96	0.04±0.01	0.05±0.01	1.39±0.27	4.97

SM	d18:1/14:0	675.5	0.31±0.06	0.31±0.02	0.98±0.19	0.53	0.89±0.09	0.71±0.04	0.78±0.09	1.24
(18)	d18:0/16:0	705.5	0.58±0.14	0.69±0.02	1.19±0.29	0.98	1.57±0.19	1.15±0.07	0.72±0.09	2.20
	d18:1/16:0	703.5	5.15±1.04	6.29±0.20	1.22±0.25	<u>8.71</u>	14.98±1.34	11.93±0.46	0.80±0.07	<u>20.83</u>
	d18:1/16:1	701.5	0.85±0.15	1.11±0.06	1.31±0.25	1.44	1.97±0.15	1.55±0.08	0.78±0.07	2.73
	d18:1/18:0	731.5	0.94±0.06	1.29±0.06	1.35±0.10*	1.58	2.01±0.18	2.28±0.06	1.12±0.11	2.79
	d18:1/18:1	729.5	0.60±0.05	0.78±0.03	1.31±0.11	1.01	0.96±0.08	1.00±0.03	1.04±0.10	1.32
	d18:1/20:0	759.5	19.40±0.77	24.75±0.76	1.28±0.06*	<u>32.91</u>	17.11±1.74	12.40±0.51	0.72±0.08*	<u>23.71</u>
	d18:1/20:2	755.5	0.08±0.02	0.06±0.01	0.81±0.26	0.13	0.07±0.01	0.05±0.00	0.70±0.10	0.09
	d18:1/20:6	747.5	0.15±0.01	0.24±0.03	1.54±0.22*	0.26	0.23±0.02	0.26±0.02	1.13±0.14	0.32
	d18:1/22:0	787.5	9.89±0.45	16.17±0.73	1.63±0.10*	<u>16.55</u>	9.99±1.72	8.66±0.32	0.86±0.16	<u>13.75</u>
	d18:1/22:1	785.5	8.58±1.01	9.96±0.21	1.16±0.14	<u>14.52</u>	7.00±0.54	5.63±0.12	0.81±0.07	<u>9.53</u>
	d18:1/22:6	775.5	0.20±0.02	0.27±0.02	1.34±0.22	0.33	0.20±0.01	0.25±0.01	1.27±0.09	0.27
	d18:1/23:0	801.5	0.45±0.05	0.55±0.06	1.22±0.18	0.77	1.04±0.24	0.93±0.11	0.88±0.23	1.45
	d18:0/24:0	817.5	0.11±0.01	0.12±0.02	1.11±0.21	0.18	0.14±0.01	0.26±0.00	1.86±0.09*	0.19
	d18:1/24:0	815.5	1.01±0.14	0.97±0.13	0.96±0.18	1.75	1.23±0.27	1.18±0.21	0.96±0.26	1.74
	d18:1/24:1	813.5	3.33±0.46	4.67±0.54	1.40±0.25	<u>5.69</u>	7.11±2.43	6.31±0.45	0.88±0.32	<u>9.83</u>
	d18:1/24:2	811.5	7.47±0.37	8.64±0.36	1.14±0.07	<u>12.64</u>	5.78±0.47	4.10±0.14	0.70±0.08*	<u>7.98</u>
	d20:1/24:0	843.5	0.03±0.00	0.01±0.00	0.56±0.07	0.04	0.03±0.00	0.01±0.00	0.43±0.05	0.04
Cer	d18:1/16:0	538.5	0.05±0.02	0.03±0.00	0.59±0.21	7.79	0.10±0.01	0.41±0.03	4.10±0.43*	5.06
(12)	d18:1/16:1	536.5	0.15±0.06	0.03±0.00	0.19±0.08*	<u>21.64</u>	0.05±0.00	0.03±0.00	0.62±0.06*	2.68
	d18:1/18:0	566.5	0.03±0.01	0.01±0.00	0.49±0.27	3.53	0.04±0.00	0.13±0.01	3.36±0.51	1.98
	d18:1/18:1	564.5	0.01±0.00	0.00±0.00	0.30±0.10	1.71	0.01±0.00	0.01±0.00	1.36±0.20	0.35
	d18:1/20:2	590.5	0.03±0.01	0.01±0.00	0.19±0.09*	3.80	0.01±0.00	0.02±0.00	1.56±0.34	0.73
	d18:1/22:0	622.5	0.04±0.01	0.06±0.00	1.50±0.25	6.07	0.28±0.03	0.53±0.08	1.91±0.34	<u>14.09</u>
	d18:1/22:1	620.5	0.04±0.03	0.01±0.00	0.19±0.15*	5.89	0.02±0.00	0.03±0.01	1.40±0.51	1.23
	d18:1/22:6	610.5	0.01±0.00	0.00±0.00	0.34±0.16	1.29	0.00±0.00	0.01±0.00	2.16±0.50	0.27
	d18:0/24:0	652.5	0.01±0.00	0.01±0.00	0.89±0.23	1.28	0.05±0.01	0.07±0.02	1.49±0.51	2.44
	d18:1/24:0	650.5	0.16±0.03	0.21±0.02	1.35±0.28	<u>22.12</u>	1.02±0.20	1.79±0.10	1.75±0.35	<u>51.31</u>

HexCer (11)	d18:1/24:1	648.5	0.16±0.01	0.11±0.01	0.68±0.09	<u>22.78</u>	0.38±0.03	0.69±0.08	1.82±0.25	<u>18.94</u>
	d20:1/24:0	678.5	0.02±0.00	0.01±0.00	0.50±0.13	2.10	0.02±0.00	0.03±0.00	1.65±0.45	0.93
	d18:1/16:0	700.5	0.20±0.01	0.54±0.02	2.66±0.15*	7.81	0.32±0.02	0.50±0.03	1.58±0.13	6.03
	d18:1/16:1	698.5	0.08±0.00	0.18±0.01	2.31±0.20*	3.00	1.92±0.17	0.38±0.01	0.19±0.02*	<u>36.49</u>
	d18:1/18:0	728.5	0.07±0.01	0.12±0.01	1.70±0.33*	2.74	0.40±0.06	0.12±0.01	0.30±0.05*	7.67
	d18:1/18:1	726.5	0.05±0.01	0.09±0.01	1.85±0.44*	1.98	0.39±0.04	0.18±0.00	0.46±0.05*	7.38
	d18:1/20:0	756.5	0.24±0.04	0.33±0.04	1.40±0.26	9.14	0.05±0.00	0.08±0.00	1.71±0.13	0.90
	d18:1/20:1	754.5	0.07±0.01	0.10±0.01	1.51±0.33*	2.52	0.03±0.00	0.03±0.00	1.02±0.16	0.60
	d18:1/22:0	784.5	0.40±0.07	0.17±0.01	0.42±0.08*	<u>15.51</u>	0.43±0.03	1.00±0.07	2.30±0.21*	8.24
	d18:1/22:1	782.5	0.12±0.03	0.06±0.01	0.52±0.15*	4.56	0.23±0.03	0.15±0.01	0.64±0.10	4.38
Hex2Cer (3)	d18:1/24:0	812.5	0.50±0.07	0.25±0.02	0.50±0.08*	<u>19.34</u>	0.59±0.05	1.11±0.06	1.88±0.18*	<u>11.21</u>
	d18:1/24:1	810.5	0.63±0.10	0.21±0.01	0.33±0.06*	<u>24.33</u>	0.51±0.03	1.15±0.06	2.26±0.17*	<u>9.70</u>
	d18:1/24:2	808.5	0.23±0.02	0.81±0.02	3.48±0.36*	9.05	0.39±0.04	0.39±0.02	1.01±0.12	7.39
	d18:1/16:0	862.5	0.26±0.17	0.22±0.06	0.83±0.60	21.27	0.95±0.07	1.45±0.05	1.52±0.12	<u>70.00</u>
	d18:1/24:0	974.5	0.48±0.03	0.54±0.09	1.13±0.19	<u>38.60</u>	0.12±0.01	0.13±0.01	1.12±0.16	8.49
	d18:1/24:1	972.5	0.49±0.05	0.36±0.02	0.72±0.09	<u>40.12</u>	0.29±0.03	0.45±0.22	1.54±0.76	<u>21.56</u>
	CL (18:1) ₄	727.5	0.08±0.01	0.09±0.01	1.12±0.22	18.11	0.18±0.03	0.20±0.04	1.12±0.26	21.62
	(3) (18:1, 18:2) ₄	725.5	0.35±0.05	0.40±0.04	1.15±0.20	<u>74.58</u>	0.59±0.06	0.44±0.06	0.74±0.12	<u>72.04</u>
	(18:2) ₄	723.5	0.03±0.01	0.07±0.01	2.00±0.52	7.30	0.05±0.01	0.08±0.01	1.65±0.36	6.34
	DG 14:1_16:0	556.5	2.06±0.35	1.47±0.20	0.71±0.15	3.35	2.42±0.44	1.32±0.19	0.54±0.13	2.09
(18)	16:0_16:0	586.5	10.70±2.00	9.92±1.11	0.92±0.20	<u>17.36</u>	12.77±1.60	21.61±3.12	1.69±0.32	<u>11.00</u>
	16:0_18:0	614.5	2.47±1.06	1.86±0.21	0.75±0.33	4.01	2.10±0.25	3.08±0.36	1.46±0.24	1.81
	16:0_18:1	612.5	0.90±0.20	0.58±0.05	0.65±0.16	1.45	1.03±0.08	0.91±0.09	0.86±0.11	0.89
	16:1_18:1	610.5	6.12±0.76	8.00±0.85	1.29±0.21	<u>9.93</u>	14.50±1.51	40.23±6.64	2.66±0.54	<u>12.49</u>
	16:1_18:3	606.5	0.20±0.05	0.13±0.02	0.66±0.18	0.32	0.15±0.03	0.10±0.01	0.65±0.18	0.13
	18:0_18:0	642.5	0.87±0.18	0.85±0.11	0.97±0.24	1.41	0.59±0.07	1.02±0.07	1.79±0.23	0.50
	18:0_18:1	640.5	2.43±0.30	2.26±0.28	0.93±0.16	3.94	3.35±0.38	6.74±0.79	2.00±0.32	2.88
	18:0_18:2	638.5	18.68±2.04	21.55±1.80	1.15±0.16	<u>30.33</u>	38.67±4.68	68.24±9.37	1.75±0.32	<u>33.31</u>
	18:1_18:2	636.5	6.83±0.55	7.82±0.63	1.15±0.13	<u>11.08</u>	21.84±3.37	31.76±3.20	1.45±0.27	<u>21.85</u>
	18:2_18:2	634.5	3.83±0.57	2.71±0.28	0.70±0.12	<u>6.23</u>	7.25±1.11	7.77±0.75	1.01±0.19	<u>6.25</u>
	16:1_22:1	666.5	0.49±0.13	0.67±0.09	1.30±0.40	0.80	0.34±0.09	0.40±0.04	1.14±0.36	0.29
	18:2_20:2	662.5	0.23±0.06	0.43±0.08	1.88±0.59	0.37	0.76±0.20	2.06±0.13	2.72±0.75*	0.65

TG (41/141)	20:0_20:0	698.5	2.72±0.96	1.03±0.13	0.37±0.14	4.42	1.29±0.22	1.08±0.13	0.84±0.18	1.11
	20:0_20:1	696.5	0.10±0.03	0.08±0.02	0.87±0.36	0.16	0.35±0.13	0.81±0.07	2.34±0.91	0.30
	20:0_20:3	692.5	0.34±0.14	0.58±0.08	1.71±0.75	0.55	0.45±0.15	0.21±0.03	0.43±0.15	0.39
	20:0_20:5	688.5	1.53±0.35	1.33±0.30	0.86±0.28	2.49	7.29±2.88	3.40±0.49	0.46±0.19	<u>6.28</u>
	18:0_22:6	686.5	1.12±0.29	1.03±0.11	0.92±0.26	1.81	0.95±0.07	2.19±0.15	2.31±0.24	0.82
	42:0	740.8	0.96±0.13	1.62±0.31	1.69±0.39	<u>3.39</u>	0.32±0.05	0.53±0.07	1.69±0.35	<u>3.04</u>
	42:1	738.8	0.00±0.00	0.00±0.00	0.51±0.21	0.01	0.00±0.00	0.00±0.00	1.58±0.63	0.03
	42:2	736.8	0.00±0.00	0.00±0.00	1.67±0.29	0.01	0.00±0.00	0.01±0.00	1.57±0.22	0.04
	44:2	764.8	0.00±0.00	0.03±0.00	3.97±0.36*	0.03	0.01±0.00	0.02±0.00	1.71±0.40	0.01
	46:0	796.8	0.44±0.04	0.31±0.08	0.70±0.18	1.56	0.25±0.05	0.33±0.06	1.32±0.36	2.41
	46:1	794.8	0.31±0.03	0.25±0.03	0.79±0.12	1.10	0.25±0.03	0.45±0.06	1.76±0.29	<u>2.44</u>
	46:2	792.8	0.45±0.06	0.40±0.11	0.90±0.27	1.51	0.32±0.07	0.38±0.11	1.18±0.43	<u>3.08</u>
	46:3	790.8	0.04±0.01	0.04±0.01	0.86±0.35	0.15	0.03±0.01	0.03±0.01	1.03±0.43	0.31
	46:4	788.8	0.00±0.00	0.00±0.00	1.41±0.92	0.01	0.00±0.00	0.00±0.00	0.78±0.65	0.02
	48:1	822.8	0.83±0.14	0.53±0.12	0.64±0.18	<u>2.92</u>	0.57±0.10	0.54±0.10	0.96±0.24	<u>5.45</u>
	48:2	820.8	1.22±0.13	1.69±0.49	1.38±0.43	<u>4.30</u>	0.81±0.17	0.98±0.22	1.21±0.37	<u>7.80</u>
	48:3	818.8	0.41±0.05	0.72±0.16	1.73±0.44	1.45	0.22±0.02	0.36±0.06	1.60±0.27	2.16
	48:4	816.8	0.29±0.04	0.24±0.05	0.84±0.19	1.02	0.09±0.01	0.20±0.01	2.16±0.21*	0.91
	48:5	814.8	0.03±0.00	0.03±0.01	1.05±0.24	0.10	0.01±0.00	0.02±0.00	1.82±0.38	0.09
	50:0	852.8	0.76±0.11	0.57±0.15	0.75±0.23	<u>2.66</u>	0.46±0.10	0.64±0.10	1.40±0.38	<u>4.40</u>
	50:1	850.8	2.72±0.31	2.58±0.69	0.95±0.28	<u>9.57</u>	0.65±0.09	1.06±0.11	1.64±0.28	<u>6.25</u>
	50:2	848.8	1.55±0.14	1.75±0.24	1.13±0.19	<u>5.44</u>	0.65±0.11	1.20±0.09	1.85±0.35	<u>6.25</u>
	50:3	846.8	0.18±0.00	0.30±0.02	1.62±0.09	0.64	0.27±0.02	0.56±0.02	2.07±0.17	<u>2.62</u>
	50:4	844.8	1.09±0.12	1.51±0.31	1.39±0.32	<u>3.82</u>	0.55±0.10	0.94±0.18	1.69±0.45*	<u>5.34</u>
	50:5	842.8	0.00±0.00	0.00±0.00	0.75±0.35	0.01	0.01±0.00	0.02±0.00	1.42±0.19	0.13
	50:6	840.8	0.00±0.00	0.00±0.00	1.48±0.73	0.01	0.00±0.00	0.01±0.00	1.55±0.82	0.03
	52:0	880.8	0.26±0.05	0.13±0.02	0.51±0.14*	0.91	0.18±0.03	0.23±0.06	1.25±0.41	1.76
	52:1	878.8	0.35±0.05	0.56±0.13	1.58±0.43	1.24	0.15±0.03	0.22±0.02	1.48±0.32	1.43
	52:2	876.8	4.71±0.49	5.08±1.10	1.08±0.26	<u>16.55</u>	1.24±0.11	2.33±0.18	1.87±0.22	<u>12.00</u>
	52:3	874.8	3.77±0.47	3.57±0.59	0.95±0.20	<u>13.27</u>	0.94±0.07	1.49±0.10	1.59±0.16	<u>9.04</u>
	52:4	872.8	2.90±0.36	2.44±0.46	0.84±0.19	<u>10.21</u>	0.76±0.02	1.90±0.07	2.50±0.12	<u>7.33</u>
	52:5	870.8	0.24±0.03	0.27±0.05	1.12±0.25	0.85	0.11±0.01	0.31±0.03	2.93±0.33	1.01
	52:6	868.8	0.01±0.00	0.01±0.00	0.91±0.38	0.04	0.01±0.00	0.01±0.00	1.51±0.19	0.08

52:7	866.8	0.02±0.00	0.02±0.01	1.05±0.44	0.08	0.02±0.00	0.02±0.01	1.12±0.41	0.16
54:1	906.8	0.36±0.04	0.35±0.07	0.96±0.21	1.28	0.12±0.02	0.22±0.02	1.88±0.32	1.14
54:2	904.8	0.24±0.04	0.16±0.05	0.68±0.23	0.83	0.06±0.02	0.07±0.01	1.13±0.36	0.61
54:3	902.8	0.08±0.02	0.09±0.02	1.10±0.33	0.28	0.09±0.01	0.19±0.01	1.98±0.20*	0.90
54:4	900.8	1.38±0.29	1.68±0.37	1.22±0.37	<u>4.86</u>	0.35±0.04	0.52±0.05	1.50±0.22	<u>3.34</u>
54:5	898.8	0.55±0.02	1.46±0.07	2.65±0.15*	1.94	0.27±0.02	0.40±0.02	1.51±0.14	<u>2.57</u>
54:6	896.8	1.58±0.21	1.08±0.31	0.68±0.22	<u>5.55</u>	0.34±0.02	1.05±0.08	3.12±0.29*	<u>3.24</u>
54:7	894.8	0.15±0.02	0.15±0.03	1.05±0.24	0.51	0.05±0.01	0.09±0.01	1.81±0.31	0.46
56:6	924.8	0.01±0.00	0.03±0.00	3.37±0.18*	0.04	0.05±0.00	0.10±0.01	2.19±0.21	0.45
56:9	918.8	0.12±0.01	0.22±0.04	1.91±0.43*	0.41	0.04±0.00	0.09±0.00	2.30±0.27*	0.36
56:10	916.8	0.12±0.01	0.19±0.04	1.55±0.35	0.43	0.04±0.00	0.09±0.00	2.22±0.27*	0.38
58:9	946.8	0.08±0.01	0.08±0.01	0.96±0.24	0.28	0.02±0.00	0.05±0.00	1.93±0.34*	0.23
60:13	986.8	0.19±0.02	0.19±0.04	0.97±0.22	0.68	0.06±0.00	0.16±0.01	2.52±0.24	0.61

Table S5. Potentially available acyl chains of a) PC, b) PE and c) TG based on CID spectra using nUHPLC-ESI-MS/MS.

a) PC								
molecular species	possible acyl chains	<i>m/z</i>	molecular species	possible acyl chains	<i>m/z</i>	molecular species	possible acyl chains	<i>m/z</i>
28:2	14:0/14:2	674.5		18:0/18:1			16:1/22:4	
30:0	14:0/16:0	706.5	36:2	18:0/18:2	786.5		18:1/20:4	
32:0	16:0/16:0	734.5		18:1/18:1			18:0/20:5	
32:1	14:0/18:1	732.5	36:3	16:0/20:3	784.5		20:3/18:2	
	16:0/16:1			18:1/18:2		38:6	18:1/20:5	806.5
32:2	16:1/16:1	730.5	36:4	16:0/20:4	782.5		18:2/20:4	
	14:0/18:2		36:5	16:0/20:5	780.5		16:1/22:5	
34:0	18:0/16:0	762.5	36:6	16:1/20:5	778.5		16:0/22:6	
34:1	16:0/18:1	760.5	38:2	18:0/20:2	814.5	40:4	16:0/24:4	838.5
34:2	16:0/18:2	758.5		20:0/18:2			18:0/22:4	
34:3	16:0/18:3	756.5	38:3	18:0/20:3	812.5	40:5	18:0/22:5	836.5
34:4	14:0/20:4	754.5		18:1/20:2			18:1/22:4	
34:5	14:0/20:5	752.5	38:4	16:0/22:4	810.5		20:1/20:4	
36:0	16:0/20:0	790.5		20:3/18:1		40:6	18:0/22:6	834.5
	18:0/18:0			20:4/18:0		40:7	18:1/22:6	832.5
36:1	16:0/20:1	788.5	38:5	16:0/22:5	808.5	40:8	18:2/22:6	830.5

b) PE					
molecular species	possible acyl chains	<i>m/z</i>	molecular species	possible acyl chains	<i>m/z</i>
34:1	18:1/16:0	718.5		18:1/20:2	
34:2	16:0/18:2	716.5	38:4	16:0/22:4	768.5
36:1	20:1/16:0	746.5		20:4/18:0	
	18:0/18:1		38:5	16:0/22:5	766.5
36:2	18:1/18:1	744.5		16:1/22:4	
36:3	16:0/20:3	742.5	38:6	18:0/20:6	764.5
	18:1/18:2		40:4	18:0/22:4	796.5
36:4	16:0/20:4	740.5	40:5	18:0/22:5	794.5
38:1	18:0/20:1	774.5		20:5/20:0	
	18:1/20:0		40:6	18:0/22:6	792.5
38:2	20:0/18:2	772.5	40:7	18:1/22:6	790.5
38:3	18:0/20:3	770.5			

molecular species	possible acyl chains	<i>m/z</i>	molecular species	possible acyl chains	<i>m/z</i>	molecular species	possible acyl chains	<i>m/z</i>
42:0	14:0_14:0_14:0	740.8		14:0_16:1_18:3			16:0_18:2_18:2	
42:1	14:0_14:0_14:1	738.8		14:0_16:2_18:2			16:1_18:0_18:3	
42:2	14:0_14:1_14:1	736.8		14:1_16:1_18:2			16:1_18:1_18:2	
44:2	12:0_14:0_18:2	764.8		16:1_16:1_16:2		52:5	16:0_16:1_20:4	870.8
	12:0_14:1_18:1		48:5	12:0_18:2_18:3	814.8		16:0_18:1_18:4	
	12:1_14:0_18:1			12:0_18:1_18:4			16:0_18:2_18:3	
	12:0_16:0_16:2			14:0_16:1_18:4			16:1_18:2_18:2	
	12:0_16:1_16:1			14:1_16:0_18:4			16:1_18:1_18:3	
	14:0_14:1_16:1		50:0	14:0_18:0_18:0	852.8	52:6	14:0_18:2_20:4	868.8
	12:1_16:1_16:0		50:1	14:0_18:0_18:1	850.8		16:1_16:1_20:4	
46:0	14:0_16:0_16:0	796.8		14:0_16:0_20:1			16:0_16:1_20:5	
46:1	14:0_14:0_18:1	794.8		16:0_16:0_18:1			16:0_16:2_20:4	
	12:0_16:0_18:1			16:0_16:1_18:0			16:0_18:3_18:3	
	12:0_16:1_18:0		50:2	16:0_16:1_18:1	848.8	52:7	14:1_16:0_22:6	866.8
	14:0_16:0_16:1			16:0_16:0_18:2			14:0_16:1_22:6	
	14:1_16:0_16:0			14:0_18:1_18:1		54:1	16:0_18:0_20:1	906.8
46:2	12:0_16:1_18:1	792.8	50:3	14:0_18:1_18:2	846.8		16:0_18:1_20:0	
	12:0_16:0_18:2			14:0_16:0_20:3			18:0_18:0_18:1	
	12:1_16:0_18:1			16:0_16:1_18:2		54:2	16:0_18:2_20:0	904.8
	14:0_14:0_18:2		50:4	14:0_18:1_18:3	844.8		16:0_18:1_20:1	
	14:0_14:1_18:1			14:0_18:2_18:2		54:3	16:0_18:1_20:2	902.8
46:3	12:0_16:0_18:3	790.8		16:0_16:0_18:4			18:1_18:1_18:1	
	12:0_16:1_18:2			16:1_16:0_18:3			18:0_18:1_18:2	
	12:0_16:2_18:1			16:0_16:2_18:2		54:4	16:0_18:1_20:3	900.8
	12:1_16:1_18:1			14:1_18:0_18:3			18:0_18:1_18:3	
	12:1_16:0_18:2		50:5	14:1_18:2_18:2	842.8		18:0_18:2_18:2	
	14:0_14:1_18:2			16:1_16:1_18:3		54:5	16:0_18:1_20:4	898.8
	14:1_14:1_18:1			16:1_16:2_18:2			16:1_18:0_20:4	
46:4	12:0_16:0_18:4	788.8	50:6	14:0_18:2_18:4	840.8		16:0_18:2_20:3	
	14:0_16:1_16:3			14:0_16:1_20:5		54:6	16:0_18:1_20:5	896.8
	12:0_16:3_18:0			14:1_16:1_20:4			16:1_18:1_20:4	
	12:0_14:0_20:4			14:1_18:1_18:4		54:7	16:0_16:1_22:6	894.8
48:1	14:0_16:0_18:1	822.8		14:0_18:3_18:3			16:0_18:1_20:5	
	14:0_16:1_18:0			14:2_18:1_18:3			14:0_18:1_22:6	
	16:0_16:0_16:1		52:0	16:0_16:0_20:0	880.7	56:6	16:0_180_22:6	924.8
48:2	12:0_18:1_18:1	820.8		16:0_18:0_18:0			16:0_18:1_22:5	
	14:0_16:1_18:1		52:1	16:0_16:1_20:0	878.8		16:0_18:2_22:4	
	14:1_16:0_18:1			16:1_18:0_18:0			16:1_18:2_20:3	
	14:0_16:0_18:2			14:0_18:0_20:1		56:9	16:0_18:3_22:6	918.8
	16:0_16:1_16:1			16:0_18:0_18:1			16:1_18:2_22:6	
48:3	12:0_18:2_18:2	818.8	52:2	16:0_18:0_18:2	876.8		16:0_20:4_20:5	

	14:0_16:1_18:2		16:0_18:1_18:1	56:10	16:1_18:3_22:6	916.8
	14:0_16:2_18:1		16:1_18:0_18:1		16:1_20:4_20:5	
	14:0_16:0_18:3	52:3	16:0_16:1_20:2	874.8	58:9	18:1_18:2_22:6 946.8
	14:1_16:0_18:2		16:0_18:1_18:2	60:13	18:2_20:5_22:6	966.8
	16:1_16:1_16:1		16:0_16:0_20:3			
48:4	12:0_18:2_18:2	816.8	16:1_18:1_18:1			
	12:0_18:1_18:3	52:4	16:0_18:1_18:3	872.8		

Table S6. Relative ratio (PMOp/control) of lipid amounts in each lipoprotein fraction between PMOp and control groups selected for lipid species showing significant changes (> 1.5-fold and p-value < 0.05, marked with *) either in HDL or LDL fraction of patients. Number percentage in “abun” represents the relative abundance in each lipid class.

class	molecular species	m/z	HDL			LDL				
			control (n=10)	PMOp (n=10)	PMOp/control	abun. (%)	control (n=10)	PMOp (n=10)	PMOp/control	abun. (%)
PC	34:1	760.5	12.14±0.88	27.61±1.08	2.28±0.19*	<u>10.04</u>	18.12±1.66	19.27±0.96	1.06±0.11	<u>11.15</u>
	34:2	758.5	25.60±3.67	46.10±4.31	1.80±0.31*	<u>21.18</u>	26.47±2.00	22.79±1.11	0.86±0.08	<u>16.28</u>
	36:2	786.5	15.03±0.99	34.41±3.01	2.29±0.25*	<u>12.44</u>	17.89±1.50	18.97±0.90	1.06±0.10	<u>11.00</u>
	36:3	784.5	9.00±1.18	16.46±1.85	1.83±0.32*	<u>7.45</u>	12.13±0.84	11.08±0.65	0.91±0.08	<u>7.43</u>
	38:4	810.5	6.75±0.49	12.89±0.97	1.91±0.20*	<u>5.59</u>	9.88±0.75	8.77±0.41	0.89±0.08	<u>6.08</u>
	38:5	808.5	7.72±0.75	10.18±1.06	1.31±0.19	<u>6.39</u>	9.25±0.65	6.20±0.36	0.65±0.06*	<u>5.69</u>
	40:6	834.5	4.60±0.27	8.64±0.70	1.87±0.19*	<u>3.81</u>	6.64±0.49	5.65±0.34	0.85±0.08	<u>4.09</u>
PEp	P-16:0/20:4	724.5	1.42±0.17	3.21±0.31	2.26±0.35*	<u>26.11</u>	1.26±0.14	2.57±0.27	2.05±0.31*	<u>30.98</u>
	P-18:0/20:4	752.5	2.08±0.09	4.85±0.21	2.33±0.14*	<u>38.32</u>	1.53±0.13	4.20±0.21	2.74±0.27*	<u>37.83</u>
	P-18:1/20:4	750.5	1.53±0.22	2.93±0.26	1.91±0.32	<u>28.16</u>	0.94±0.04	2.51±0.18	2.68±0.22*	<u>23.08</u>
LPA	16:0	409.5	3.18±0.18	7.34±0.36	2.30±0.17*	<u>54.23</u>	4.69±0.54	1.95±0.29	0.41±0.08*	<u>58.62</u>
PA	18:1/22:6	745.5	2.88±0.19	3.66±0.18	1.25±0.10	<u>69.04</u>	5.29±0.36	1.74±0.67	0.33±0.13*	<u>65.81</u>
LPI	16:0	571.5	0.01±0.00	0.03±0.00	2.12±0.29*	<u>11.22</u>	0.03±0.00	0.03±0.01	1.08±0.23	<u>19.03</u>
PI	18:0/20:4	885.5	3.02±0.43	1.01±0.07	0.33±0.05*	<u>36.19</u>	0.84±0.06	0.73±0.04	0.87±0.08	<u>12.50</u>
SM	d18:1/22:0	787.5	9.89±0.45	16.17±0.73	1.63±0.10*	<u>16.55</u>	9.99±1.72	8.66±0.32	0.86±0.16	<u>13.75</u>
Cer	d18:1/16:1	536.5	0.15±0.06	0.03±0.00	0.19±0.08*	<u>21.64</u>	0.05±0.00	0.03±0.00	0.62±0.06*	2.68
HexCer	d18:1/16:1	698.5	0.08±0.00	0.18±0.01	2.31±0.20*	3.00	1.92±0.17	0.38±0.01	0.19±0.02*	<u>36.49</u>
	d18:1/22:0	784.5	0.40±0.07	0.17±0.01	0.42±0.08*	<u>15.51</u>	0.43±0.03	1.00±0.07	2.30±0.21*	8.24
	d18:1/24:0	812.5	0.50±0.07	0.25±0.02	0.50±0.08*	<u>19.34</u>	0.59±0.05	1.11±0.06	1.88±0.18*	<u>11.21</u>
	d18:1/24:1	810.5	0.63±0.10	0.21±0.01	0.33±0.06*	<u>24.33</u>	0.51±0.03	1.15±0.06	2.26±0.17*	<u>9.70</u>
TG	50:4	844.8	1.09±0.12	1.51±0.31	1.39±0.32	<u>3.82</u>	0.55±0.10	0.94±0.18	1.69±0.45*	<u>5.34</u>
	54:6	896.8	1.58±0.21	1.08±0.31	0.68±0.22	<u>5.55</u>	0.34±0.02	1.05±0.08	3.12±0.29*	<u>3.24</u>

