



Doctoral Thesis

Consumer exposure to ultraviolet (UV) filters in personal care products

Author(s):

Manová, Eva

Publication Date:

2014

Permanent Link:

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-010346823> →

Rights / License:

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#) →

This page was generated automatically upon download from the [ETH Zurich Research Collection](#). For more information please consult the [Terms of use](#).

Diss. ETH No. 22086

**Consumer exposure to ultraviolet (UV) filters
in personal care products**

A thesis submitted to attain the degree of

DOCTOR OF SCIENCES of ETH ZURICH

(Dr. sc. ETH Zurich)

presented by

Eva Manová

Master of Chemistry, The University of Edinburgh

born on 4th July, 1987

citizen of the Czech Republic

accepted on the recommendation of

Prof. Dr. Konrad Hungerbühler, examiner

Prof. Dr. Rudiyanto Gunawan, co-examiner

Dr. Natalie von Götz, co-examiner

2014

Abstract

Increasing awareness of the potential harm of ultraviolet (UV) radiation exposure has driven a rising consumer demand for personal care products (PCPs) containing UV filters that protect our skin from UV-induced damage. Unfortunately, there are also risks of adverse health effects for consumers associated with increasing UV filter exposure. These have attracted considerable attention in recent years within both the scientific community and the general public. Attention has primarily focused on the potential of organic UV filters to cause endocrine disruption and allergic and photoallergic contact dermatitis.

Nowadays, dermatologists often recommend to use UV filter-containing PCPs not only during periods of extensive sun exposure (e.g., beach holiday), but also in our daily lives. Furthermore, PCPs may contain UV filters as UV absorbers to prevent product degradation by light. Therefore, in addition to traditional sunscreens, UV filters can be found in many other categories of PCPs. These include skin care, facial makeup, and lip care products, many of which are used simultaneously by the same consumer. When such uses occur, aggregate exposure needs to be assessed, taking into account all individual PCPs containing the same UV filter to which a consumer is likely exposed. This information is needed for risk assessment, which then compares the aggregate exposure and toxicologically derived health-effect data to estimate risks to consumers.

The potential endocrine-disrupting effects attributed to the organic UV filter ethylhexyl methoxycinnamate (EHMC) are being debated. Emerging clinical and experimental studies indicate that another organic UV filter, octocrylene (OCT), is both a contact and a photocontact allergen. The overall aim of this doctoral thesis was therefore to gain a thorough knowledge regarding the aggregate consumer exposure to EHMC and OCT in the German-speaking part of Switzerland, including identification of all major exposure sources. This information will allow consumers seeking to reduce exposures to make precautionary choices. However, due to a substantial amount of missing input data, the first two steps needed were: i) to collect data on PCP patterns for Swiss-German consumers (Chapter 2) and ii) to measure UV filter concentrations in PCPs sold on the Swiss market (Chapter 3).

In a study presented in Chapter 2, a postal questionnaire survey was conducted to determine the use patterns of eight leave-on PCP categories among the German-speaking population of Switzerland (N = 1,196; ages ≤1–97 years), providing for the first time in

Europe PCP use data for children <12 years of age. The majority of respondents (99%) reported having used at least one of the investigated PCP categories in the past year. Co-use of two or more PCP categories at the same time was common and more complex amongst adults. Regular use of face cream and body lotion was very high in the youngest group of children aged ≤ 4 years (more than 79% respondents), who may be more vulnerable to certain adverse effects of some PCP ingredients. A comparison with previously collected information on PCP use patterns in Germany and the Netherlands indicates differences in PCP use patterns among European consumers and suggests that surrogate PCP use data from other countries must be used with caution. Our work extends the existing knowledge of PCP use patterns in Europe and provides essential data for new exposure assessments, especially for ingredients contained in PCPs used by young consumers.

In Chapter 3, we provide the current frequency of occurrence and concentrations of organic UV filters in PCPs, including for the first time PCPs used in everyday life. The frequency of occurrence, as well as concentrations of UV filters contained in PCPs, change over time. Furthermore, in Switzerland the exact UV filter concentrations are confidential. Until now, limited data were available for the levels of organic UV filters in PCPs, and these data refer mainly to sunscreens. In this study, a total of 116 PCPs were selected on the basis of the PCP use questionnaire and distributed among seven PCP categories: lip care products, lipsticks, face creams, liquid makeup foundations, aftershaves, hand creams, and sunscreens. Concentrations of 22 organic UV filters were measured in the selected PCPs. The most frequently occurring UV filters were butyl methoxydibenzoylmethane (BMBM), detected in 82 products (71%), and the two target UV filters of this thesis i.e., EHMC detected in 59 products (51%) and OCT detected in 50 products (43%). BMBM, EHMC, and OCT concentrations averaged 2.6%, 4.0%, and 6.0% (w/w), respectively. Overall, UV filter concentrations in PCPs applied regularly throughout the year can be as high as those in sunscreens that are primarily used for sun protection and, therefore, applied only on selected days. PCPs that are used on a regular basis, and often simultaneously, thus represent an important and, as yet, unquantified source of UV filter exposure. This study provides essential information for aggregate exposure assessments that combine data on concentrations of individual UV filters widely used in a variety of PCP categories.

Finally, in Chapter 4 we employed the previously collected data and evaluated the aggregate exposure of the Swiss-German population to EHMC via the use of PCPs. Thus, we provide the first comprehensive information about the current EHMC exposure sources and aggregate exposure levels. In our probabilistic modeling method performed at an individual level, PCP use data obtained by the PCP use questionnaire were linked to concentration data on EHMC gained from chemical analyses of PCPs used by the questionnaire

respondents. The modeled median and 99.9th percentile of the internal aggregate exposure for the general population was 0.012 and 0.873 mg day⁻¹ kg⁻¹ and 0.008 and 0.122 mg day⁻¹ kg⁻¹ for the summer/autumn and winter/spring period, respectively. The major contributors to internal aggregate exposure were sunscreen products in summer/autumn (females: 64%; males: 85%; children aged ≤12 years 93%). In winter/spring, lip care dominated for females (30%) and sunscreen for males (38%) and children aged ≤12 years (50%). Overall, the internal aggregate exposure estimates for the studied population are shown to be below the Derived No Effect Level (DNEL) for EHMC i.e., the level of exposure above which humans should not be exposed. However, when intense, short-term exposure via sunscreen is accounted for during a sunbathing day, at the high-end percentiles (99.9th) the predicted aggregate exposure exceeds the DNEL for thyroid-disrupting effects such as for children aged ≤4 years, who might be particularly susceptible to endocrine disrupting events. It is nevertheless critical to acknowledge that quantitative data on transdermal penetration of EHMC from PCPs are currently insufficient. Future studies are warranted to provide accurate quantitative data on transdermal penetration of EHMC and to determine its metabolic fate in humans.

In Chapter 5, we further quantified OCT exposure via PCPs, including aggregate exposure, for use in an exposure-based quantitative risk assessment (QRA) for sensitizing substances. As for EHMC, probabilistic modeling of exposure was performed at an individual level for the studied population. This time however, simulating one-day of concurrent and single PCP use and assessing external exposure instead of internal exposure. Acceptable external exposure levels (AELs) were calculated for OCT and compared with the computed exposure estimates. Overall, 19%, 33%, and 79% of respondents were exposed to OCT via hand cream, face cream, and sunscreen, respectively. Sunscreen was the most prevalent exposure source and the largest contributor to aggregate exposure. For the study population, the overall mean and median exposure to OCT via sunscreen alone exceeded the QRA-predicted AEL of 4.9 µg cm⁻². Use of OCT in PCPs at levels greater than the threshold for induction of skin sensitization might lead to an increased number of sensitized individuals. It is therefore desirable that the safety of OCT in PCPs is re-evaluated.

Zusammenfassung

Aufgrund der wachsenden Risikowahrnehmung in der Bevölkerung bezüglich möglicher Risiken von ultravioletter (UV) Strahlung, fordern Konsumenten zunehmend Körperpflegeprodukte mit UV-Filtern, die unsere Haut vor Schäden durch UV-Strahlung schützen. Allerdings könnte die steigende Konsumentenexposition durch UV-Filter mit einem erhöhten Risiko für gesundheitliche Schäden einhergehen. Diese Risiken haben in letzter Zeit zunehmende Aufmerksamkeit erhalten, sowohl durch Wissenschaftler als auch durch die Bevölkerung. Im Fokus steht in diesem Zusammenhang vor allem das Potenzial von organischen UV-Filtern als endokrine Disruptoren zu wirken, sowie allergische und photoallergische Kontaktekzeme auszulösen.

Heutzutage empfehlen Dermatologen häufig die Anwendung von Produkten mit UV-Filtern sowohl während längerer Exposition gegenüber UV-Licht (z.B. während eines Strandurlaubs) als auch im täglichen Leben. Ausserdem enthalten viele Körperpflegeprodukte UV-Filter, um sie vor Abbau durch UV-Strahlung zu schützen. Darum befinden sich UV-Filter ausser in klassischen Sonnencremes auch in zahlreichen anderen Klassen von Körperpflegeprodukten, wie z.B. Hautpflegeprodukte, Gesichtsmakeup und Lippenpflegeprodukte, welche häufig gleichzeitig angewendet werden. In solchen Fällen, muss die aggregierte Exposition beurteilt werden, die alle individuellen Körperpflegeprodukte erfasst, welche denselben UV-Filter enthalten. Diese Informationen werden für eine Risikobewertung benötigt, die die aggregierte Exposition und die Daten zu gesundheitlichen Schäden aus toxikologischen Studien vergleicht, um das Risiko für Konsumenten zu bewerten.

Die endokrin disruptiven Effekte des organischen UV-Filters Ethylhexylmethoxycinnamat (EHMC) werden zur Zeit wissenschaftlich diskutiert. Neue klinische Studien und Laborexperimente weisen darauf hin, dass ein anderer organischer UV-Filter, Octocrylen (OCT), sowohl Kontakt- als auch Photokontaktallergien auslösen können. Das Ziel dieser Doktorarbeit ist deshalb eine gründliche Untersuchung der Konsumentenexposition gegenüber EHMC und OCT in der Deutschschweiz, inklusive der Identifizierung aller grösseren Expositionsquellen, um Konsumenten die Wahl weniger belasteter Produkte zu ermöglichen. Da allerdings ein Grossteil der benötigten Daten für eine umfassende Expositionsbewertung fehlten, mussten zunächst folgende Schritte durchgeführt werden: i)

Datenerfassung über die Anwendungsmuster von Körperpflegeprodukten in der schweizerdeutschen Bevölkerung (Kapitel 2) und ii) Messung von UV-Filterkonzentrationen in Körperpflegeprodukten, die auf dem Schweizer Markt verkauft werden (Kapitel 3).

Zuerst wurde mithilfe eines Fragebogens eine Umfrage per Post durchgeführt, um in der deutschsprachigen Bevölkerung der Schweiz (N = 1196; Alter ≤1-97 Jahre) die Anwendungsmuster von acht auf der Haut verbleibenden Kategorien von Körperpflegeprodukten zu erfassen. Diese Studie, welche in Kapitel 2 dargestellt ist, lieferte erstmals Anwendungsdaten zu Körperpflegeprodukten für europäische Kinder, die jünger als 12 Jahre sind. Die Mehrheit der Studienteilnehmer (99%) gibt für das vergangene Jahr den Gebrauch von mindestens einer der untersuchten Kategorien von Körperpflegeprodukten an. Von Erwachsenen wurde häufig der gleichzeitige Gebrauch von zwei oder mehr Produktkategorien angegeben. In der jüngsten untersuchten Altersgruppe (Kinder unter 4 Jahren), die stärker durch negative Effekte von Inhaltsstoffen gefährdet sein könnte, wurde eine hohe, regelmässige Anwendung von Gesichtscreme und Bodylotion festgestellt (mehr als 79% der Teilnehmer). Ein Vergleich mit ähnlichen früheren Studien zum Anwendungsverhalten von Körperpflegeprodukten in Deutschland und den Niederlanden weist auf unterschiedliche Anwendungsmuster zwischen verschiedenen europäischen Ländern hin, weshalb Extrapolationen zwischen verschiedenen Ländern nur unter Vorbehalt gemacht werden sollten. Die vorliegende Arbeit erweitert bestehendes Wissen zu Anwendungsmustern von Körperpflegeprodukten in Europa und liefert essentielle Daten für neue Expositionsbewertungen, insbesondere für Inhaltsstoffe in Körperpflegeprodukten, die von jungen Konsumenten verwendet werden.

Kapitel 3 liefert neueste Zahlen zu Auftrittshäufigkeiten und Konzentrationen organischer UV-Filter in Körperpflegeprodukten, die erstmals alltäglich genutzte Körperpflegeprodukte beinhalten. Auftrittshäufigkeiten und Konzentrationen von UV-Filtern in Körperpflegeprodukten ändern sich über die Jahre. Zudem werden in der Schweiz die genauen UV-Filterkonzentrationen nicht auf dem Label genannt, sondern sind vertraulich. Bislang war deshalb die Datenlage zu Konzentrationen organischer UV-Filter in Körperpflegeprodukten sehr begrenzt und bezog sich vor allem auf Sonnencremes. Insgesamt wurden anhand des im vorherigen Kapitel behandelten Fragebogens 116 Körperpflegeprodukte ausgewählt und in sieben Kategorien unterteilt: Lippenpflegeprodukte, Lippenstifte, Gesichtscremes, flüssiges Makeup (Foundation), Aftershave, Handcremes und Sonnencremes. Die Konzentrationen von 22 UV-Filtern wurden in diesen 116 Produkten gemessen. Die am häufigsten vorkommenden UV-Filter waren Butylmethoxydibenzoylmethan (BMBM), das in 82 Produkten (71%) nachgewiesen wurde, und die beiden Zielsubstanzen dieser Arbeit, EHMC, das in 59 Produkten (51%) und

OCT, das in 50 Produkten (43%) nachgewiesen wurde. Die Konzentrationen von BMBM, EHMC und OCT lagen bei durchschnittlich 2.6, 4.0 und 6.0% (w/w). Insgesamt wurde beobachtet, dass UV-Filterkonzentrationen in Körperpflegeprodukten, die über das ganze Jahr hindurch angewendet werden, genauso hoch sein können, wie die Konzentrationen in Sonnencremes, welche gezielt dem Sonnenschutz dienen und nur an ausgewählten Tagen benutzt werden. Aus diesem Grund stellen Körperpflegeprodukte, die regelmässig, und häufig gleichzeitig angewendet werden, eine erhebliche, aber bislang nicht quantifizierte Expositionsquelle von UV-Filtern dar. Die vorliegende Arbeit liefert grundlegende Informationen, die für eine aggregierte Expositionsbewertung benötigt werden.

Anschliessend wenden wir in Kapitel 4 die im Vorfeld gesammelten Daten in einer Bewertung der aggregierten Exposition der Deutschschweizer Bevölkerung gegenüber EHMC durch die Anwendung von Körperpflegeprodukten an. Dadurch liefern wir erstmals umfassende Informationen über aktuelle EHMC-Expositionsquellen und aggregierte Expositionswerte. In unserer probabilistischen Modellierungsmethode, die auf der Ebene des einzelnen Konsumenten durchgeführt wurde, haben wir Anwendungsdaten zu Körperpflegeprodukten aus der Fragebogenerfassung mit Konzentrationsdaten aus den chemischen Analysen der von den Studienteilnehmern genutzten Produkte kombiniert. Der errechnete Median und das 99.9. Perzentil der internen aggregierten Exposition für die Allgemeinbevölkerung lagen bei 0.012 und 0.874 mg day⁻¹ kg⁻¹ und 0.008 und 0.122 mg day⁻¹ kg⁻¹ für Sommer/Herbst und Winter/Frühling. Der grösste Beitrag zur internen aggregierten Exposition kommt im Sommer/Herbst von Sonnencremeprodukten (Frauen: 64%; Männer: 85%; Kinder unter 12 Jahren: 93%). Im Winter/Frühling dominiert der Einfluss von Lippenpflegeprodukten für Frauen (30%) und von Sonnencremes für Männer (38%) und Kinder unter 12 Jahren (50%). Insgesamt sind die berechneten Werte für die interne aggregierte Exposition in der untersuchten Bevölkerung unter dem Derived No Effect Level (DNEL) von EHMC, also unter dem Grenzwert für Humanexposition. Allerdings können die Expositionswerte durch Sonnencremes an einzelnen Sonnentagen in den höheren Perzentilen (99.9.) den DNEL für Effekte auf die Schilddrüse überschreiten, z.B. für Kinder unter 4 Jahren, die besonders empfindlich für endokrin disruptive Effekte sind. Man muss jedoch festhalten, dass es bislang nur unzureichende Daten bezüglich der transdermalen Penetration von EHMC aus Körperpflegeprodukten gibt. Weitere Studien werden dringend benötigt um präzise Daten zur transdermalen Penetration von EHMC zu erhalten und sein metabolisches Verhalten im Menschen zu erfassen.

In Kapitel 4 wurde die Exposition gegenüber OCT aus Körperpflegeprodukten, inklusive der aggregierten Exposition, quantifiziert, um eine expositionsbasierte Risikobewertung durchzuführen. Auf gleiche Weise wie für EHMC wurde eine probabilistische

Expositionsmodellierung auf der Ebene der Einzelperson durchgeführt. Dieses Mal wurde allerdings die tagesbasierte Exposition berechnet, sowohl für einzelne als auch für aggregierte Anwendungen. Zulässige Expositionswerte (acceptable exposure levels, AELs) wurden für OCT berechnet und mit den berechneten Expositionswerten verglichen. Insgesamt waren 19, 33 und 79% der untersuchten Bevölkerung über Handcremes, Gesichtscreme und Sonnencreme gegenüber OCT exponiert. Sonnencreme war die am weitesten verbreitete Expositionsquelle und trug am stärksten zur aggregierten Exposition bei. Für die untersuchte Bevölkerung übertrafen der allgemeine Mittelwert und Median für die OCT Exposition allein durch Sonnencremes den vorhergesagten AEL-Wert von $4.9 \mu\text{g cm}^{-2}$. Wird OCT in Körperpflegeprodukten in Konzentrationen verwendet, die zu Expositionswerten oberhalb des Grenzwertes für Hautsensibilisierung führen können, kann sich die Anzahl an sensibilisierten Personen erhöhen. Aus diesem Grund wäre es empfehlenswert, die Sicherheit von OCT in Körperpflegeprodukten neu zu bewerten.