Türgimaal [sellest reisukirjeldus »Post.« 1896, eriraamatuna a. 1896 ja 1898]; 1898—99; 1908; 1912) ning viibis uurimisteekondadel Lutsi (1893) ja Kraasna (1901) eestlaste juures. A. 1901 valiti K. Peterburi ülikooli võrdleva keeleteaduse eradotsendiks, mis kohal ta viibis kuni a. 1903, olles sama ajani ka Peterburi May gümnaasiumis kasvatajaks ja sealsamas ning Pavlovi instituudis saksa ja ladina keele õpetajaks. A. 1903 sügisel asus K. Tartu, kuhu jäi kuni a. 1918, töötades Puškini nimelise tütarlaste, Treffneri ja kroonu poeglaste gümnaasiumis saksa ning ladina keele õpetajana. Nende ametite kõrval oli K. tegevuses ka »Postimehe« toimetuses, kodumaa osakonna redaktorina, lühemat aega ka toimetuse sekretärina ning ärijuhatajana. A. 1918 tegid Saksa okupatsioonivõimud K.-le ettepaneku hakata Tartu ülikoolis pidama loenguid eesti keele üle, mida aga vastu võtmast K. keeldus. Sama a. sügisel kaotas K. okupatsioonivõimude survel kooliõpetaja koha. Eesti iseseisvuse algul nimetati K. sama a. dets. Eesti saadikuks Soome, a. 1922 aga samasse ameti Londoni ja a. 1923 ühtlasi ka Haagi. A. 1900 peale on K. abielus prof. Julius Krohni tütre Ainoga (vt. Aino Kallas).

Üle 30 a. on K. algatavalt ja juhtivalt teotsenud meie vaimukultuuri tegelaste esimestes ridades. Juba Peterburis viibides ja Tartuski pidas K. esimesi üldhariduslikke kursusi töölistele. Hiljemini oli ta Tartus Eesti Noorsoo Kasvatuse Seltsi asutajaist ja selle tegevuse tähtsamaist õhutajaist, saades nimetatud seltsi poolt a. 1906 asutatud tütarlaste gümnaasiumi juhatajaks, seega siis tuntavalt mõjutades selle õppeasutuse arenemissihi määramist. Vaesemate eestisoost üliõpilaste laenukassa, n. n. «Bergmanni abiraha» (asut. a. 1903) juhatuses oli K. pikemat aega kandvamaks jõuks. Tema teeneks on m. s. ka uueaasta õnnesoovidest vabastumise kombe elluviimine ülalnimetatud asutuse kasuks. Ka Eesti Rahva Muuseumi, eriti aga selle Arhiivraamatukogu asutamisel (aa. 1908–09) oli K. juhtivalt tegev: tema algatusel asuti eestikeelsete raamatute kogumisele ERM-i heaks ja annetati Eesti Üliõpilaste Seltsi poolt eestikeelsed raamatud ja baltikumi-osakond ERM-le alusvaraks. A. 1904 algas K.-e. üritusel ja korraldusel ülemaaline rahvaviiside korjamine, mille tulemuseks oli 1916 a. ERM-l 12.808-numbriline viisiteisendite (ja -dublettide) ning 215.950-realine muinaslaulude kogu. See J. Hurti ja M J. Eiseni sõnalise muinasvara kõrval tähtsamaist Eesti muinaskultuuri salvedest on seni aluseks olnud Eesti omapärasele muusikakultuurile. Tähtsat osa on K. etendanud ka Eesti karskusliikumises ja Eesti Kirjanduse Seltsi tegevuse esimesel aastakümnel. Kolmatkümmet aastat on K. kasulikult mõjunud ka Eesti ja Soome lähenemiseks. Tõhusat toetust on K.-lt saanud ka liikumine eesti omapäraste isikunimede heaks, eriti tema brošüüri kaudu: »120 uut ristinime« (Tartus 1914; esimest korda ilm. »Sirvilaudades« 1911, pealkirjaga »Uusi nimesid?«; III tr. 1921). — Eriliselt tähtsad on aga K. teened Eesti folkloori alal. Üksikute ja väheste teadete põhjal otsis K. esimesena üles Eesti emamaast XVI a. s. lõpu- ja XVII a. s. esipoolikul eemale paisatud rahvakillud, Kraasna ja Lutsi maarahva, kellelt ta koha peal kogus etnoloogidele, lingvistidele ja usundiuurijaile ülitähtsa ainestiku, mis sisaldab rohkelt ülestähendisi lutsilaste ja kraasnalaste rahvaluulest, kombeist, keelest ja muinasusust, millede väärtus on eriliselt suur neis peituvate kronoloogiliste kriteeriumide tõttu, kuna need rahvariismed on pikemat aga elutsenud muudest eestlastest täiesti eraldi, võõrakeelsete rahvaste seas. Nende uurimiste tulemusena ilmusid K.-l »Lutsi Maarahvas« (Helsingis, 1894, 151 lk.; äratr ajakirjast »Suomi«), »Kaheksakümmend Lutsi Maarahva muinasjuttu« (Tartus, 1900, 202+V lk.; äratr. Verh. GEG XX andest), »Achtzig Märchen der Ljutziner Esten« (ibid.), »Kraasna Maarahvas« (Hels., 1903, VI+128 lk. + kaart; äratr. ajak. »Suomi«), »Die Krasnyjer Esten. Volkskundliche Beschreibung« (Tartu, 1904, 71 lk.; Verh. GEG XXI, 2). — Oma uurimiste tulemused eesti rahvaluule alal on K. avaldanud juba ülalmainitud doktoriväitekirjas »Die Wiederholungslieder der estnischen Volkspoesie« I (Hels., 1901, V + 398 lk. + kaart), millest ta, tarvitades geograafilist (Julius ja Kaarle Krohni) meetodit, jälgib eesti korduslaulude tüüpisid, nende tekkimise paika, aega ja rändamisteesid, määrab ära nende algkuju ning selgitab eesti laulude vahekorda vastavate lauludega Soomes. Eesti folkloori käsitlevaist uurimustest väärivad veel tähelepanu »Übersicht über das Sammeln estnischer Runen« (Hels., 1902, 34 lk.; äratr. FUF II, 1), »Estonian Folklore« (London, 1923, 16 lk.; äratr. ajak. »Folklore«). — Tegelenud on K. ka keeleteaduse ja kirjakeele arendamise alal, juhtides omal ajal tähelepanu murrete uurimise ja murdesõnastiku koostamise tarvidusele ja soovitades eesti kirjakeelt rikastada murdeliste sugemetega. E. Kirjand. S.-is õhutas ta eestikeelsete teaduslikkude oskussõnade loomist. Kirjakeele normi kindlaksmääramisel ja muutmisel soovitab ta arvestada terves keeles levinud muutusi. K.-e muudest teaduslikkudest ja populaarteadusl. töödest ja artikleist nimetatagu veel: väljaande »Bibliogr.