lahkus H. õpetajaametist pastor emeeritus'ena, et kogu oma tööjõudu pühendada rahvaluule trükkitoimetamisele. Uue väljaannetesarja, mis pidi sisaldama kõiki eesti rahvalaule maakondade kaupa, alustas ta setudelt kogutud lauludega; selleks käis ta suvel 1902 ja 1903 (Vene Keiserliku Geograafia Seltsi kulul) Setumaal lisamaterjali kogumas. Soome Kirjanduse Seltsi vastutulekul ilmusid selle toimetiste hulgas „Setukeste laulud. Pihkva-Eestlaste vanad rahvalaulud, ühes Räpinä ja Vastseliina lauludega" I (Helsingi, 1904; XXXIX + 736 + 88 lk. + Setumaa kaart), mille sisuks on eepilised laulud, kuna II (*ibid.*, 1905; XXVII + 710 + 168 lk.) ja posthuumselt ilmunud III kd. (*ibid.*, 1907; IX + 474 + 137 lk.) sisaldasid lüürilisi laule. Kõik kolm köidet kandsid ühist tiitlit: *Monumenta Estoniae antiquae vel Thesaurus antiquus, carmina, sermones, opiniones aliasque antiquioris aevi commemorationes Estonorum continens. Pars prima: Carmina popularia.* See suurväljaanne katkes toimetaja surma tõttu III köitega. „Setukeste lauludes" on iga laululeisendi juurde märgitud kõik uurijaile vajalikud andmed, osa laule — peaasjalikult H-a enda üleskirjutised — on trükitud teaduslikus kirjaviisis (foneetiliste märkidega), muu osa aga vastavalt originaalkäsikirjadele; ka on lisatud juurde saksakeelsed laulude sisukokkuvõtted ja võrdlev ülevaade iga laulutüübi teisendeist. H-a poolt suure andumuse ja hoolega viimisteldud väljaandena on „Setukeste laulud" eesti rahvaluulekirjanduses seni ületamatuks kapitaalteoseks. Eesti rahvalaulude trükkitoimetamist on püütud jätkata Eesti Vabariigi päevil. Prof-te W. Anderson'i, M. J. Eisen'i, K. Krohn'i jt. (vt. neid ka *Suppl.*) toimetusel on ilmunud kaks köidet eepilisi rahvalaule, laulutüüpide järgi järjestatult „Eesti rahvalaulud dr. Jakob Hurda ja teiste kogudest" I (Tartu, 1926), II (*ibid.*, 1932). Laiema publiku tarvis kavatses H. avaldada kirjakeelset antoloogiat soomlaste „Kanteletari" eeskujul, kuid trükis on sellest ilmunud ainult proovivihk „Kaks keelt „Vanast kandlest" " (JSFOu XXIII$_{22}$, 1906; ilm. ka äratrükina ja E. Kirj. 1906, lk. 140—149). Populaarteadusliku tööna eesti rahvausundi alalt on ta avaldanud 62-leheküljelise töö „Eesti astronoomia" (Tartu, 1899; täiendatud kujul saksa keeles „Über estnische Himmelskunde", Peterburi, 1900). „Setukeste laulude" I köite sissejuhatuses avaldas H. esmakordselt usaldatava ülevaate setude elukohtadest ja arvust (ühes Setumaa kaardiga); see on hiljemini ilmunud ka eriväljaandena „Setukeste elukohad ja arv" (Tall., 1919). Kokkuvõtliku etnograafilise ülevaate setudest ja nende elust pakub ta kirjutises „Über die pleskauer esten oder die sogenannten setukesen" (Anzeiger d. FUF III, 3, 1903; eriraamatuna Helsingi, 1904; ilm. ka vene keeles väljaandes: Извѣстія Императорскаго Русскаго Географическаго Обществa XLI, 1905). H-a mälestuseks asutati a-l 1908 Eesti Rahva Muuseum, mille ühe eriosakonna moodustab 1927 asutatud Eesti Rahvaluule Arhiiv. Ta 25. surmapäevaks on ilmunud folkloristidelt talle pühendatud koguteos „Vanavara vallast" (Tartu, 1932).

H. töötas silmapaistvate tagajärgedega ka eesti keele arendamise alal. Uue kirjaviisi innuka pooldajana avaldas ta juba 1864. a. Tartus Õp. E. S-i väljaandel brošüüri „Lühikene õpetus õigest kirjutamisest parandatud viisi". Uue kirjaviisi propageerimist jätkas ta ka hiljemini „Eesti Postimehe lisalehe" toimetajana (1871) ja Eesti Kirjameeste Seltsi esimehena. Sellest ajast on pärit H-l terve rida keelelisi ettepanekuid: *armastatakse, elatatud* pro *armastakse, elatud, ää* pro *ea (pää, pääsema, hää, sääl), elasivad, elaksivad* pro *elasid, elaksid*, enam *o*-häälikut (*joba, asjost*). Sõnavara soovitas ta rikastada uute sõnade tuletamise, murretest ja soome keelest laenamise teel. E. Kirjameeste Seltsis H-a poolt esitatud mitmed keelereeglid, näiteks *-gi, -ki* liite, sõnade kokku- ja lahkukirjutamise, *h* säilitamise kohta sõna alguses, on jäänud tänini kehtima. Samuti on püsinud ka ta seisukohad *tahavad ~ tahtvad, võõras ~ võeras, maid ~ maasid* küsimustes. Õigekeelsuslasena on H. üldiselt püüdnud lähtuda otstarbekohasuse printsiibist, eelistades keeleajalooliselt vanemaid vorme. Tegelikku keelekorraldust puudutavate ettepanekute kõrval nimetatagu ka tema puhteaduslikku laadi töid. Nende hulgas on kesksemaks Helsingi ülikoolis 1886.