

En 1904, le duc d'Orléans part visiter la Norvège et le Spitzberg à bord du Maroussia. Puis, désireux de poursuivre ses expéditions dans l'Océan Arctique, il acquiert un vaisseau plus important, le Belgica, avec lequel il mène trois campagnes polaires entre 1905 et 1909 : il visite la côte est du Groenland et découvre des terres encore inconnues qu'il nomme Île-de-France et Terre de France. Il rallie ensuite l'Islande, où il visite le site du parlement traditionnel, l'Þing.

Grâce au récit de cette expédition, qui donne lieu à plusieurs publications, le prince obtient les médailles d'or des Sociétés de géographie belge et française. Surtout, il rapporte quantité de trophées de chasse qu'il décide d'entreposer dans un musée. En 1907, il transfère ses collections taxidermiques à Wood Norton, dans le Worcestershire. La même année, il repart pour le Grand Nord avec le projet de longer la côte nord de la Sibérie, de la mer de Kara au détroit de Béring. Mais cette nouvelle expédition, racontée dans *La Revanche de la banquise*, est un échec et le prince ne parvient pas plus loin que la Nouvelle-Zemble. En 1911, le duc d'Orléans repart une dernière fois vers les régions australes. Des îles Féroé, il rapporte alors d'autres dépouilles animales, qui l'obligent à agrandir son musée de Norton

À partir de 1912, il reprend ses expéditions terrestres, mais cette fois plus pour la chasse que pour la science. Il part alors pour le Turkestan, la Russie et le Caucase. L'année suivante, il se rend en Argentine et au Chili. À son retour en Europe, il décide de quitter l'Angleterre et de s'établir en Belgique. Près de Bruxelles, il s'installe dans la résidence de Pluck Dael, qu'il renomme manoir d'Anjou, et y fait bâtir une vaste annexe destinée à accueillir ses collections cynégétiques.

Une fois la paix revenue, Philippe d'Orléans retourne vivre en Belgique, où il a le plaisir de retrouver intactes les collections animalières qu'il y a laissées. Pendant l'occupation allemande, l'un de ses cousins éloignés, le grand-duc de Mecklembourg-Schwerin, est en effet intervenu auprès du haut-commandement militaire pour les préserver, car il voulait les offrir un jour à la France. Il met ainsi en place de nombreux dioramas qui représentent les paysages qu'il a parcourus tout au long de sa vie. Puis, le prince reprend ses voyages dans le but de compléter ses collections. En 1921, il repart en Argentine et au Chili puis fait le tour de l'Afrique à bord du navire anglais le Saxon. En janvier 1925, il est en Haute-Égypte pour y chasser des oiseaux puis retourne en Europe en passant par Jérusalem. Enfin, en janvier 1926, il se rend une dernière fois en Éthiopie et en Somalie, où il récolte quantité de plantes et d'arbustes destinés à être exposés dans de nouveaux dioramas.

À la suite de ce dernier voyage, le prince se rend en Italie et s'installe au Palais d'Orléans de Palerme. Après une syncope, le prince est atteint d'une congestion pulmonaire, aggravée par une varicelle probablement contractée en Égypte. Il meurt quelques jours plus tard, le 27 mars, en compagnie de sa sœur aînée, la reine Amélie de Portugal.

Tout au long de ses voyages, le duc d'Orléans a amassé quantité de trophées de chasse qu'il a fait naturaliser et exposer dans ses châteaux, d'abord en Angleterre puis en Belgique. Mais son souhait était de léguer ces dépouilles à la France afin de constituer un musée d'histoire naturelle ouvert au public.

À sa mort, la reine Amélie de Portugal fait donc en sorte de réaliser cette volonté et le Muséum d'Histoire naturelle de Paris accueille, dans une de ses annexes, ses précieuses collections. Cependant, le bâtiment, édifié par l'architecte Weber et décoré par Maxime Real del Sarte, est mal conçu et les dépouilles sont rapidement abîmées par le temps. En 1960, les autorités doivent donc se résoudre à démolir le monument et les dépouilles indemnes sont transportées à la Grande galerie de l'évolution, où l'on peut encore les admirer aujourd'hui