Oppenheimer thực hiện những khám phá quan trọng về thiên văn học lý thuyết (đặc biệt là về thuyết tương đối tổng quát và lý thuyết hạt nhân), vật lý hạt nhân, phổ học, và lý thuyết trường lượng tử, mở rộng lý thuyết này vào điện động lực học lượng tử. Hình thức luận toán học của cơ học lượng tử tương đối tính cũng thu hút sự quan tâm của ông, mặc dù ông nghi ngờ tính khả thi của nó. Công trình của ông tiên đoán nhiều phát hiện về sau, bao gồm neutron, meson và sao neutron.[37]

Ban đầu, mối quan tâm chính của ông là về lý thuyết phổ liên tục và bài báo đầu tiên của ông (1926) liên quan tới lý thuyết lượng tử về phổ dải phân tử. Ông phát triển một phương pháp để thực hiện tính toán về xác suất chuyển vị. Ông tính toán hiệu ứng quang điện cho hydrogen và tia X, thu được hệ số hấp thụ tại bờ năng lượng mức K. Tính toán của ông phù hợp những quan sát về hấp thụ tia X ở Mặt Trời, nhưng không khớp cho trường hợp hydrogen. Nhiều năm về sau người ta nhận ra rằng Mặt Trời phân lớn cấu tạo từ hydrogen và hóa ra tính toán của ông thực sự đã chính xác.[38][39]

Einstein writing at a desk. Oppenheimer sits beside him, looking on.

Albert Einstein và Oppenheimer

Oppenheimer cũng có những đóng góp quan trọng trong lĩnh vực lý thuyết về phơi chiếu tia vũ trụ và bắt đầu công trình mà về sau dẫn tới mô tả về xuyên hầm lượng tử. Năm 1931 ông đồng tác giả một bài báo về "Lý thuyết tương đối tính về Hiệu ứng quang điện" với học trò của mình Harvey Hall,[40] trong đó, dựa trên bằng chứng thực nghiệm, ông đã bác bỏ chính xác khẳng định của Dirac rằng hai mức năng lượng của nguyên tử hydrogen có cùng năng lượng. Theo sau đó, một nghiên cứu sinh của ông, Willis Lamb, xác định rằng đây là hệ quả của thứ về sau biết tới dưới tên Dịch chuyển Lamb, nhờ đó Lamb giành giải Nobel Vật lý năm 1955.[37]

Oppenheimer cùng với nghiên cứu sinh tiến sĩ đầu tiên của ông, Melba Phillips, nghiên cứu về tính toán độ phóng xạ nhân tạo dưới bắn phá deuteron. Khi Ernest Lawrence và Edwin McMillan bắn phá hạt nhân với deuteron họ tìm thấy kết quả gần phù hợp với tiên đoán của George Gamow, nhưng khi thử với năng lượng cao hơn và các hạt nhân nặng hơn, kết quả không còn tương thích. Năm 1935 Oppenheimer và Phillips hoàn thành một lý thuyết mà ngày nay được gọi là quá trình Oppenheimer-Phillips để giải thích các kết quả, một lý thuyết còn được sử dụng tới ngày nay.[41]

Ngay từ 1930, Oppenheimer đã viết một bài báo về cơ bản tiên đoán được sự tồn tại của positron, sau khi Paul Dirac đề xuất rằng electron có thể có điện tích dương và năng lượng âm. Bài báo của Dirac đưa ra phương trình Dirac, thống nhất cơ học lượng tử, thuyết tương đối hẹp và khái niệm spin còn mới mẻ bấy giờ để giải thích Hiệu ứng Zeeman.[42] Oppenheimer, dựa trên bằng chứng thực nghiệm, đã bác bỏ ý kiến cho rằng các electron được tiên đoán có điện tích dương là proton. Ông lập luận rằng chúng phải có cùng khối lượng như electron, trong khi thí nghiệm cho thấy proton nặng hơn nhiều. Hai năm sau, Carl David Anderson phát hiện ra positron và nhận giải Nobel Vật lý năm 1936.[43]

Vào cuối những năm 1930 Oppenheimer bắt đầu quan tâm tới thiên văn vật lý, có thể nhờ qua tình bạn với Richard Tolman, dẫn tới một loạt các bài báo. Bài đầu tiên trong số đó, cùng viết với Robert Serber mang tựa đề "Về tính ổn định của các nhân sao Neutron",[44] Oppenheimer khám phá các đặc tính của sao lùn trắng. Sau đó ông viết một bài khác với một trong các sinh viên của mình, George Volkoff, "Về các nhân Neutron khối lượng lớn",[45] trong đó họ chứng minh rằng có một giới hạn, gọi là Giới hạn Tolman-Oppenheimer-Volkoff, đối với khối lượng của các sao mà vượt quá đó chúng sẽ không tồn tại ổn định như những sao neutron nữa mà sẽ trải qua sự sụp đổ hấp dẫn. Cuối cùng, năm 1939, Oppenheimer và một sinh viên khác của ông, Hartland Snyder, viết bài báo "Về sự co hấp dẫn liên tục",[46] tiên đoán sự tồn tại của thứ mà ngày nay được gọi là hố đen. Đây là bài báo được trích dẫn nhiều thứ hai của ông sau bài về xấp xỉ Born–Oppenheimer, và những bài báo này là yếu tố quan trọng trong việc làm mới lại ngành nghiên cứu vật lý thiên văn ở Hoa Kỳ những năm 1950, chủ yếu bởi John A. Wheeler.[47]

Các bài báo của Oppenheimer bị cho là khó hiểu ngay cả so với tiêu chuẩn của các chủ đề trừu tượng mà ông là chuyên gia. Ông yêu thích sử dụng những kỹ thuật toán học tao nhã, nhưng hết sức phức tạp, để chứng minh các nguyên tắc vật lý, mặc dù ông thường bị chỉ trích là có những lỗi về toán, thường là do vội vàng. Snyder nói, "vật lý thì ông ấy tuyệt, nhưng số học thì tồi tệ".[37]

Oppenheimer chỉ công bố có 5 bài báo khoa học, một trong số đó về lý sinh học, sau Chiến tranh thế giới thứ hai, và không bài nào sau năm 1950. Murray Gell-Mann là nhà khoa học khách mời tại Viện Nghiên cứu Cao cấp Princeton năm 1951 từng làm việc với ông, nhận xét rằng:

Ông ấy không có Sitzfleisch, hay 'khúc thịt ngồi,' như khi bạn ngồi trên ghế. Theo như tôi biết, ông ấy không bao giờ viết một bài báo dài hay làm một tính toán dài, không bất cứ thứ gì kiểu đó. Ông không có kiên nhẫn cho chúng; công trình của riêng ông chỉ bao gồm những aperçus-bài tổng quan ngắn, nhưng là những bài khá xuất chúng. Nhưng ông gây cảm hứng cho người khác làm việc, và ảnh hưởng của ông thật siêu phàm.[48]

Những mối quan tâm trải khắp của Oppenheimer đôi khi cản trở sự tập trung của ông vào những dự án cụ thể. Chẳng hạn năm 1933 ông học tiếng Phạn và gặp nhà Ấn Độ học Arthur W. Ryder ở Berkeley. Ông đọc Bhagavad Gita trong tiếng Phạn gốc và sau đó coi đó là một trong những cuốn sách hình thành nên triết học nhân sinh của mình.[49] Một người bạn và đồng nghiệp thân thiết của ông, Isidor Rabi, đưa ra cách lý giải của riêng mình:

Oppenheimer quá mức am hiểu những lĩnh vực này, vốn nằm ngoài truyền thống khoa học, ví dụ như mối quan tâm của ông tới tôn giáo, nhất là tôn giáo Hindu, dẫn tới một cảm giác về sự thần bí của vũ trụ bao quanh ông như một đám sương mù. Ông nhìn vào vật lý sáng rõ, hướng về thứ đã được thực hiện, nhưng ở biên cương của nó ông có khuynh hướng thấy có nhiều hơn những thứ huyền bí và mới mẻ hơn là thực sự có ... [Ông quay lưng] khỏi những phương pháp cứng nhắc, thô thiển của vật lý lý thuyết để đi vào lĩnh vực thần bí của trực giác rộng mở.[50]

Bất chấp điều đó, nhiều nhà quan sát chẳng hạn như Luis Alvarez nhận xét rằng giá như ông sống đủ lâu để chứng kiến những tiên đoán của mình được thực nghiệm chứng minh, Oppenheimer hẳn phải giành một giải Nobel với công trình về sụp đổ hấp dẫn, liên quan tới sao neutron và hố đen.[51][52] Ngày nay nhìn lại, một số nhà vật lý và sử gia xem đây là cống hiến quan trọng nhất của ông, nhưng những nhà khoa học cùng thời với ông không đánh giá như vậy.[53] Nhà vật lý đồng thời là sử gia khoa học Abraham Pais từng hỏi Oppenheimer rằng ông tự xem điều gì là cống hiến khoa học đáng kể nhất của mình; chính Oppenheimer đã nêu công trình về electron và positron chứ không phải sụp đổ hấp dẫn.[54] Oppenheimer được đề cử giải Nobel Vật lý 3 lần, vào các năm 1945, 1951 và 1967, nhưng không đoạt giải.[55] Trong những năm 1920, Oppenheimer tỏ ra thờ ơ với những vấn đề trần thế. Ông nói rằng ông không đọc báo hay nghe radio, và chỉ tình cờ biết về sự sụp đổ Phố Wall (1929) 6 tháng sau khi nó xảy ra nhờ trò chuyện với Ernest Lawrence trong một chuyến đi dạo.[56] Ông từng nhận xét rằng ông chưa từng bỏ một lá phiếu nào cho tới trước cuộc bầu cử năm 1936. Tuy nhiên, từ 1934 trở đi, ông ngày càng trở nên quan tâm tới chính trị và sự vụ quốc tế. Năm 1934-1935, ông để dành 3% số lương của mình-tính ra 100 đô la mỗi năm—để ủng hộ những nhà vật lý trốn chạy khỏi Đức Quốc xã. Trong cuộc tổng bãi công của thủy thủ San Francisco năm 1934, ông và một số học trò, trong đó có Melba Phillips và Bob Serber, tham dự một buổi tuần hành của những người thủy thủ. Ông thường xuyên muốn giúp Serber có một vị trí ở Berkeley nhưng bị Birge ngăn chặn, ông này cảm thấy "một tay Do Thái trong khoa là đủ lắm rồi".[57]

Mug shot with "J. R. Oppenheimer" typewritten below.

Ảnh chụp làm phù hiệu của Oppenheimer ở Los Alamos

Mẹ Oppenheimer mất năm 1931, và ông trở nên thân thiết với cha mình, người tuy vẫn sống ở New York nhưng thường xuyên tới thăm California.[58] Khi cha ông mất năm 1937, gia tài để lại 392602 đô la (tức khoảng 6,5 triệu đô la theo giá trị 2015[59]) chia giữa Oppenheimer và em trai Frank, Oppenheimer ngay lập tức viết một chúc thư để lại gia sản của ông cho Đại học California làm học bổng cho nghiên cứu sinh.[60] Như nhiều trí thức trẻ những năm 1930, ông ủng hộ những cải cách xã hội mà về sau bị quy mang hơi hướng cộng sản. Ông hiến tặng tiền cho các nỗ lực cải cách mà về sau bị coi là cánh tả dưới thời McCarthy. Đa số trong những việc làm được cho là cấp tiến của ông bao gồm việc tổ chức quyên tiền cho phái Cộng hòa trong Nội chiến Tây Ban Nha và các hoạt động chống phát xít khác. Ông chưa bao giờ công khai gia nhập Đảng Cộng sản Mỹ, dù ông có chuyển tiền cho những thành viên phái tự do qua những người quen bị cho là đảng viên cộng sản.[61]

Năm 1936, Oppenheimer quen biết Jean Tatlock, con gái của một giáo sư văn học ở Berkeley và là sinh viên trường Y Đại học Stanford. Hai người có quan điểm chính trị tương đồng; Tatlock viết cho Western Worker, một tờ báo của Đảng Cộng sản Mỹ.[62]

Tatlock chia tay với Oppenheimer năm 1939, sau một mối quan hệ đầy sóng gió. Tháng 8 năm đó ông gặp Katherine ("Kitty") Puening Harrison, một sinh viên cấp tiến, cựu đảng viên cộng sản. Harrison đã kết hôn 3 lần trước đó. Đám cưới đầu tiên kéo dài chỉ vài tháng. Người chồng thứ hai của cô là một đảng viên cộng sản tích cực tham gia và bị giết trong Nội chiến Tây Ban Nha.[63] Cô cưới một bác sĩ và chuyển đến California năm 1939, đăng ký vào học thạc sĩ ở UCLA. Oppenheimer tạo ra một vụ lùm xùm nhỏ khi ngủ với cô ngay sau một bữa tiệc ở nhà người bạn Tolman. Mùa hè năm 1940 Kitty tới ở với Oppenheimer tại trang trại ở New Mexico và chỉ ly hôn với người chồng bác sĩ khi nhận ra mình có thai. Oppenheimer và Kitty kết hôn ngày 1 tháng 11 năm 1940.[64]

Đứa con đầu tiên hai người có là Peter sinh vào tháng 5 năm 1941,[65] tiếp đó là Katherine ("Toni"), sinh tại Los Alamos, New Mexico, ngày 7 tháng 12 năm 1944.[64] Trong thời gian này, Oppenheimer lại tiếp tục đi lại với Jean Tatlock.[66] Về sau mối quan hệ liên tục này trở thành vấn đề trong những buổi điều trần về ông vì những mối quan hệ trong Đảng Cộng sản của Tatlock.[67] Nhiều người thân thiết với Oppenheimer hoạt động tích cực trong Đảng Cộng sản những năm 1930 và 1940, bao gồm cả em trai ông, vợ Frank Jackie,[68] Kitty,[69] Jean Tatlock, chủ đất của ông Mary Ellen Washburn,[70] và một số nghiên cứu sinh của ông ở Berkeley.[71]

Khi ông tham gia Dự án Manhattan năm 1942, Oppenheimer viết trong bảng điều tra an ninh cá nhân của mình rằng ông là "thành viên của hầu như mọi tổ chức thuộc Mặt trận Cộng sản ở miền West Coast".[72] Nhiều năm sau ông nói rằng ông không hề nhớ mình có nói điều đó, và rằng nó không đúng, và nếu thực ông có nói gì kiểu như vậy, nó phải là một "sự khuếch đại nửa đùa cợt".[73] Ông có đăng ký nhận báo của tờ People's World,[74] một cơ quan của Đảng Cộng sản, và ông có xác nhận năm 1954, "Tôi có liên hệ với phong trào Cộng sản".[75] Từ 1937 tới 1942, Oppenheimer là thành viên của một "nhóm thảo luận" (theo lời của ông) ở Berkeley mà sau đó những thành viên khác, Haakon Chevalier[76][77] và Gordon Griffiths, gọi là một đơn vị bí mật của Đảng Cộng sản trong giới giáo sư ở Berkeley.[78]

Cục Điều tra Liên bang (FBI) đã ghi chép về một buổi họp tại nhà của đảng viên tự nhận Haakon Chevalier có Oppenheimer tham gia, có xuất hiện lãnh tụ Cộng sản ở California William Schneiderman, và Isaac Folkoff, người liên lạc ở miền West Coast giữa Đảng Cộng sản Mỹ và NKVD (mật vụ Liên Xô), vào khoảng mùa thu năm 1940, trong thời kỳ Hiệp ước Xô-Đức. Ít lâu sau đó, FBI thêm tên Oppenheimer vào danh sách Chỉ mục Bắt giam, tức cần bắt giữ trong trường hợp khẩn cấp toàn quốc, và liệt kê ông vào hạng "Khuynh hướng Dân tộc chủ nghĩa: Cộng sản".[79] Tranh luận về việc Oppenheimer có phải là đảng viên cộng sản bấy lâu đã rẽ sang những vấn đề tỉ mỉ; nhìn chung hầu hết mọi sử gia tin rằng ông có sự cảm thông mạnh mẽ với cánh tả trong thời kỳ này và liên hệ với nhiều đảng viên cộng sản, mặc dù vẫn có tranh cãi liệu ông đã chính thức nhận thẻ đảng chưa. Năm 1954 ông phủ nhận mình là một đảng viên, nhưng tự xem mình là một người đồng hành (tiếng Anh: "fellow traveler") mà ông định nghĩa là người đồng ý với phần lớn mục đích của chủ nghĩa cộng sản, nhưng không bằng lòng tuân thủ mù quáng những mệnh lệnh từ bất cứ cơ quan cộng sản nào.[80]

Trong suốt thời kỳ phát triển bom nguyên tử, Oppenheimer nằm dưới sự điều tra bởi cả FBI lẫn đơn vị an ninh nội bộ của Dự án Manhattan vì những liên hệ với cánh tả trong quá khứ của ông. Ông bị đặc vụ thuộc quân đội bám đuôi trong một chuyến đi tới California vào tháng 6 năm 1943 để thăm người bạn gái cũ của mình, Jean Tatlock, đang bị trầm uất nghiêm trọng. Ông ở lại căn hộ của bà qua đêm.[81] Tin Tatlock tự tử vào ngày 4 tháng 1 năm 1944 khiến cho Oppenheimer hết sức sầu muộn.[82] Vào tháng 8 năm 1943, ông tự khai báo cho đặc vụ của Dự án Manhattan biết rằng George Eltenton, người ông không quen biết, đã gạ gẫm lấy bí mật hạt nhân ở ba người dưới quyền ông ở Los Alamos nhân danh Liên Xô. Khi bị truy vấn về vấn đề này về sau, Oppenheimer thú nhận rằng người duy nhất tiếp cận ông về chuyện này là bạn ông Haakon Chevalier, một giáo sư văn học tiếng Pháp ở Berkeley, người đã đề cập vấn đề một cách riêng tư tại một bữa tối ở nhà Oppenheimer.[83] Chuẩn tướng Leslie Groves, người phụ trách Dự án Manhattan, cho rằng Oppenheimer quá quan trọng đối với dự án để có thể loại bỏ dựa trên hành vi đáng ngờ của ông. Ngày 20 tháng 7 năm 1943, ông viết cho Khu vực Công trình Manhattan:

Tương ứng với mệnh lệnh miệng của tôi ngày 15 tháng 7, quyền miễn trừ an ninh phải được cấp cho Julius Robert Oppenheimer không được chậm trễ bất kể những thông tin mà các anh quan ngại về ông Oppenheimer. Ông ta đặc biệt cần thiết cho dự án.[84]